



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 699 07 123 T2** 2004.04.01

EP 1 013 684 B1

(12)

## Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) EP 1 013 684 B1

(21) Deutsches Aktenzeichen: 699 07 123.2

(96) Europäisches Aktenzeichen: 99 124 846.9

(96) Europäischer Anmeldetag: 15.12.1999

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: 28.06.2000

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: 23.04.2003

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: 01.04.2004

(51) Int Cl.<sup>7</sup>: **C08G 14/06**

C08G 59/08, C08L 61/34, C08L 63/04

(30) Unionspriorität:

35616598 15.12.1998 JP

10018699 07.04.1999 JP

32969399 19.11.1999 JP

(73) Patentinhaber:

NEC Corp., Tokio/Tokyo, JP

(74) Vertreter:

PAe Splanemann Reitzner Baronetzky  
Westendorf, 80469 München

(84) Benannte Vertragsstaaten:

DE, GB

(72) Erfinder:

Kiuchi, Yukihiro, Minato-ku, Tokyo, JP; Iji,  
Masatoshi, Minato-ku, Tokyo, JP; Soyama,  
Makoto, Minato-ku, Tokyo, JP

(54) Bezeichnung: **Flammgehemmtes Harzmaterial und flammgehemmte Harzzusammensetzung**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

## Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft ein flammhemmendes Harzmaterial sowie eine flammhemmende Harzzusammensetzung und insbesondere ein flammhemmendes Harzmaterial sowie eine flammhemmende Harzzusammensetzung, welche eine verbesserte Flammbeständigkeit, eine verbesserte thermische Beständigkeit beziehungsweise eine bessere Widerstandsfähigkeit gegen thermische Zersetzung sowie eine verbesserte Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit aufweist.

[0002] Um eine Entflammung zu verhindern, ist es notwendig, dass Harzzusammensetzungen flammhemmende Eigenschaften besitzen. Üblicherweise werden als Flammschutzmittel halogenhaltige Flammschutzmittel verwendet, wobei Antimontrioxid als unterstützendes Flammschutzmittel zusammen mit dem Flammschutzmittel verwendet wird. Aus dem halogenhaltigen Flammschutzmittel entstehen schädliche Halogenverbindungen, wie typischerweise Dioxine. Das Antimontrioxid, das als Flammschutzhilfsmittel verwendet wird, besitzt eine chronische Toxizität. Aus diesen Gründen stellen die oben beschriebenen Verbindungen ein Sicherheitsproblem beim Verbrennen oder beim Entsorgen dar. Phosphorhaltige Flammschutzmittel, wie roter Phosphor und Phosphorsäureester können das oben beschriebene Problem wirkungsvoll vermeiden. Diese phosphorhaltigen Flammschutzmittel beeinflussen die Beständigkeit der Harzzusammensetzung gegenüber Feuchtigkeit. Insbesondere bei Isolatoren für elektronische Komponenten wird eine hohe Zuverlässigkeit gefordert. Phosphorhaltige Flammschutzmittel stellen daher ein Problem bei der Verwendung als Isolatoren für elektronische Komponenten dar.

[0003] Epoxidharzzusammensetzungen weisen sehr gute mechanische Eigenschaften, Klebeeigenschaften, eine hohe chemische Beständigkeit, sowie eine hohe Beständigkeit gegenüber Wärme, sowie sehr gute isolierende Eigenschaften auf, weshalb Epoxidharzzusammensetzungen in unterschiedlichen Gebieten als Klebstoffe, Beschichtungsmaterialien, als laminierte Platten, als formbare Materialien sowie als spritzbare Materialien verwendet werden. Für Epoxidharzzusammensetzungen werden halogenhaltige Flammschutzmittel als Flammschutzmittel verwendet, wobei Antimontrioxid als zusätzliches Flammschutzmittel verwendet wird. Wird das Flammschutzmittel sowie das zusätzliche Flammschutzmittel in Epoxidharzzusammensetzungen verwendet, treten nicht nur Probleme im Hinblick auf die Sicherheit sondern auch im Hinblick auf die Korrosion von Metallen auf. Werden solche Epoxidharzzusammensetzungen als Isolatoren in elektronischen Komponenten verwendet, verschlechtert sich die Korrosionsbeständigkeit von elektrischen Verbindungen bei hoher Temperatur, weshalb sich die Zuverlässigkeit der elektronischen Vorrichtungen verschlechtert. Aus diesem Grund bestand ein Bedarf nach der Entwicklung weiterer Epoxidharzzusammensetzungen, welche frei sind von halogenhaltigen Flammschutzmitteln sowie Antimontrioxid.

[0004] Es wurden Untersuchungen durchgeführt, die flammhemmende Wirkung des Harzmaterials durch Einführung eines Triazinringes in die Molekülstruktur eines Epoxidharzes oder eines Phenolharzes zu verbessern. In der japanischen offengelegten Patentveröffentlichung Nr. 8-311142 wird die Verwendung von Mischungen aus Phenolen mit Verbindungen, welche Triazinringe aufweisen, sowie mit Aldehyden oder kondensierten Phenolen, wie Phenoltriazinharzen, als Härter für Epoxidharzzusammensetzungen beschrieben. In der japanischen offengelegten Patentveröffentlichung Nr. 10-279657 wird die Verwendung eines Phenoltriazinepoxyharzes, welches durch Glycidyl-Veretherung des oben beschriebenen Phenoltriazinharzes erhalten wird, als Hauptkomponente der Epoxidharzzusammensetzung beschrieben.

[0005] Bei der Einführung der Triazinringe in das Molekülgerüst der Epoxidharze und der Phenolharze treten jedoch die folgenden Schwierigkeiten auf.

[0006] Die flammhemmende Wirkung der Harzzusammensetzungen, welche die Phenoltriazinharze sowie die Phenoltriazin-Epoxidharze enthalten, beruht auf einem flammenreduzierenden Mechanismus durch nicht entflammbare Gase, welche als Hauptkomponente Stickstoffverbindungen enthalten, welche durch die Zersetzung der Triazine entstehen. Wird um die flammenreduzierende Wirkung zu verbessern, der Anteil an Stickstoff in der Harzzusammensetzung erhöht, verschlechtert sich die Beständigkeit der Harzzusammensetzung gegenüber einer thermischen Zersetzung, wodurch die flammhemmende Wirkung ebenfalls verschlechtert wird. Da Triazine hydrophil sind, bewirkt ein Anstieg des Anteiles an Triazinen (Stickstoff) in der Harzzusammensetzung eine deutliche Verschlechterung der Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit.

[0007] Es ist daher schwierig, die flammhemmende Wirkung der Harzzusammensetzung durch die Einführung von Stickstoffverbindungen in das Molekülgerüst der Harzzusammensetzung weiter zu erhöhen.

[0008] Es war daher erforderlich, ein neues flammhemmendes Harzmaterial sowie eine neue flammhemmende Harzzusammensetzung zu entwickeln, welche die oben beschriebenen Schwierigkeiten nicht aufweist.

[0009] Der Erfindung liegt daher die Aufgabe zugrunde, ein neues flammhemmendes Harzmaterial zur Verfügung zu stellen, welches die oben beschriebenen Schwierigkeiten nicht aufweist.

[0010] Der Erfindung liegt als weitere Aufgabe zugrunde, ein neues flammhemmendes Harzmaterial zur Verfügung zu stellen, welches eine hohe flammhemmende Wirkung aufweist.

[0011] Der Erfindung liegt als weitere Aufgabe zugrunde, ein neues flammhemmendes Harzmaterial zur Verfügung zu stellen, welches eine hohe thermische Stabilität beziehungsweise eine hohe Beständigkeit gegen-

über thermischer Zersetzung aufweist.

[0012] Weiter liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, ein neues flammhemmendes Harzmaterial zur Verfügung zu stellen, das eine hohe Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit aufweist.

[0013] Weiter liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, eine neue flammhemmende Harzzusammensetzung zur Verfügung zu stellen, welche frei von den oben beschriebenen Schwierigkeiten ist.

[0014] Weiter liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, eine neue flammhemmende Harzzusammensetzung zur Verfügung zu stellen, welche eine ausgeprägte flammhemmende Wirkung aufweist.

[0015] Eine weitere Aufgabe der Erfindung besteht darin, eine neue flammhemmende Harzzusammensetzung zur Verfügung zu stellen, welche eine hohe thermische Stabilität beziehungsweise eine hohe Beständigkeit gegenüber thermischer Zersetzung aufweist.

[0016] Eine weitere Aufgabe der Erfindung besteht darin, eine neue flammhemmende Harzzusammensetzung zur Verfügung zu stellen, welche eine hohe Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit aufweist.

[0017] Die Erfindung stellt ein flammhemmendes Phenolharzmaterial zur Verfügung, das ein Phenolkondensat enthält, worin eine polyaromatische Verbindung, die durch eine Kondensationsreaktion von Phenolen (A) mit Aromaten (B), welche keine Phenole enthalten, und einer heterocyclischen Verbindung (C), welche Stickstoff als Heteroatom enthält, erhalten wurde, über Aldehyde (D) kondensiert wird.

[0018] Durch die vorliegende Erfindung wird weiter ein flammhemmendes Epoxidharz-Material zur Verfügung gestellt, das ein Epoxidharz enthält, das durch eine Glycidyl-Veretherung mindestens eines Teils der phenolischen Hydroxylgruppe einer polyaromatischen Verbindung erhalten wurde, welche durch eine Kondensationsreaktion von Phenolen (A) mit Aromaten (B), welche keine Phenole enthalten, sowie einer heterocyclischen Verbindung (C), welche Stickstoff als Heteroatom enthält, erhalten wurde, die mit Hilfe von Aldehyden (D) kondensiert werden.

[0019] Die vorliegende Erfindung stellt weiter eine flammhemmende Harzzusammensetzung zur Verfügung, welche ein flammhemmendes Phenolharzmaterial umfasst, welches ein Phenolkondensat enthält, wobei eine polyaromatische Verbindung, die durch Reaktion eines Phenols (A) mit Aromaten (B), welche keine Phenole enthalten, sowie einer heterocyclischen Verbindung (C), welche Stickstoff als Heteroatom enthält, erhalten wurde, über Aldehyden (D) kondensiert wird.

[0020] Die Erfindung stellt weiterhin eine flammhemmende Harzzusammensetzung zur Verfügung, welche ein flammhemmendes Epoxidharzmaterial enthält, welches ein Epoxidharz enthält, welches durch Glycidyl-Veretherung zumindest eines Teils der phenolischen Hydroxylgruppen einer polyaromatischen Verbindung erhalten wurde, welche durch Reaktion eines Phenols (A) mit Aromaten (B), welche keine Phenole enthalten, sowie einer heterocyclischen Verbindung (C), welche Stickstoff als Heteroatom enthält, erhalten wurde, die mit Hilfe von Aldehyden (D) kondensiert werden.

[0021] Die oben beschriebenen und weitere Aufgaben, Eigenschaften und Vorteile der vorliegenden Erfindung werden anhand der folgenden Beschreibung erläutert.

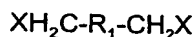
[0022] Bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung werden im Detail unter Bezugnahme auf die beigefügte Zeichnung erläutert.

[0023] Fig. 1A zeigt eine schematische Ansicht eines Flammenschutzmechanismus einer flammhemmenden Harzzusammensetzung, welche eine Schaumschicht umfasst, die frei ist von stickstoffhaltigem flammenreduzierendem Gas.

[0024] Fig. 1B stellt eine schematische Ansicht eines flammhemmenden Mechanismus einer flammhemmenden Harzzusammensetzung dar, welche eine Schaumschicht aufweist, welche mit stickstoffhaltigem flammhemmendem Gas gefüllt ist.

[0025] Durch die erste Erfindung wird ein flammhemmendes Phenolharzmaterial zur Verfügung gestellt, welches ein kondensiertes Phenol enthält, für welches eine polyaromatische Verbindung, welche durch Kondensation eines Phenols (A) mit Aromaten (B), welche keine Phenole enthalten, sowie einer heterocyclischen Verbindung (C) welche Stickstoff als Heteroatom enthält, erhalten wurde, über Aldehyde (D) kondensiert wird.

[0026] Vorzugsweise werden die Aromate (B) durch die folgende chemische Formel (1) dargestellt,



(1)

wobei  $\text{R}_1$ - aus der Gruppe von Biphenyl-Verbindungen, Phenylen-Verbindungen, Naphtalin-Verbindungen, Biphenylen-Verbindungen, Fluoren-Verbindungen, bis-Phenolfluoren-Verbindungen, und X ausgewählt ist, aus der Gruppe von Halogenatomen, Hydroxylgruppen sowie Alkoxygruppen, welche nicht mehr als 10 Kohlenstoffatome aufweisen.

[0027] Vorzugsweise ist  $\text{R}_1$  ein Biphenylderivat oder ein Phenylenderivat.

[0028] Weiter ist bevorzugt, dass die heterocyclische Verbindung (C) aus Triazinen ausgewählt ist.

[0029] Weiter enthalten die Triazine bevorzugt Verbindungen, welche zumindest eine Aminogruppe aufweisen.

[0030] Ferner ist bevorzugt, dass die Triazine zumindest eine Verbindung sind, welche ausgewählt ist aus

Melamin, Acetoguanamin und Benzoguanamin.

[0031] Durch die zweite Erfindung wird eine flammhemmende Harzzusammensetzung zur Verfügung gestellt, welche zumindest ein flammhemmendes Phenolharz-Material der ersten Erfindung enthält.

[0032] Vorzugsweise ist ferner ein aromatisches wärmehärtbares Harz enthalten, welches in der Hauptkette aromatische Ringe aufweist.

[0033] Weiter ist bevorzugt, dass das aromatische, wärmehärtbare Harz ein Epoxidharz umfasst, das eine Novolak-Struktur aufweist.

[0034] Bevorzugt ist auch, dass das aromatische, wärmehärtbare Harz ein Phenolharz enthält, das seine Novolak-Struktur aufweist.

[0035] Weiter ist bevorzugt, dass das aromatische, wärmehärtbare Harz ein Phenolaralkyl-Epoxidharz umfasst, welches aromatische Ringe in einer Hauptkette der Novolak-Struktur aufweist.

[0036] Weiter ist bevorzugt, dass das Phenolaralkyl-Epoxidharz zumindest ein Biphenylderivat oder ein Phenylenderivat in der Hauptkette der Novolak-Struktur enthält.

[0037] Bevorzugt ist auch, dass das aromatische, wärmehärtbare Harz ein Phenolaralkylharz enthält, welches in der Hauptkette der Novolak-Struktur aromatische Ringe aufweist.

[0038] Weiter ist bevorzugt, dass das Phenolaralkyl-Phenolharz zumindest ein Biphenylderivat oder ein Phenylenderivat in der Hauptkette der Novolak-Struktur enthält.

[0039] Bevorzugt ist weiter auch ein aromatisches thermoplastisches Harz enthalten, welches aromatische Ringe in der Hauptkette des Gerüsts aufweist.

[0040] Durch die dritte Erfindung wird eine Halbleitervorrichtung zur Verfügung gestellt, welche ein Abdichtharz aufweist, das die flammhemmende Harzzusammensetzung der zweiten Erfindung erhält.

[0041] Die vierte Erfindung stellt eine Leiterplatte zur Verfügung, welche einen Isolator aufweist, welcher die flammhemmende Harzzusammensetzung der zweiten Erfindung enthält.

[0042] Die fünfte Erfindung stellt einen formbaren Werkstoff zur Verfügung, welcher eine flammhemmende Harzzusammensetzung der zweiten Erfindung umfasst.

[0043] Die sechste Erfindung stellt ein flammhemmendes Epoxidharzmaterial zur Verfügung, welches ein Epoxidharz enthält, dass durch Glycidyl-Veretherung zumindest eines Teiles der phenolischen Hydroxylgruppen einer polyaromatischen Verbindung erhalten wird, welche durch eine Kondensationsreaktion von Phenolen (A) mit Aromaten (B), welche nicht Phenole umfassen, sowie einer heterocyclischen Verbindung (C), welche Stickstoff als Heteroatome enthalten, über Aldehyde (D) erhalten wird.

[0044] Vorzugsweisen weisen die Aromaten (B) die folgende chemische Formel (1) auf,



wobei  $\text{R}_1$  ausgewählt ist, aus der Gruppe von Biphenylderivaten, Phenylenderivaten, Naphtalinderivaten, Diphenylenderivaten, Fluorenderivaten, Bis-Phenolfluorenderivaten, und  $\text{X}$  ausgewählt ist aus Halogenatomen, Hydroxylgruppen, sowie Alkoxygruppen mit nicht mehr als 10 Kohlenstoffatomen.

[0045] Bevorzugt ist  $\text{R}_1$  ein Biphenylderivat oder ein Phenylenderivat.

[0046] Vorzugsweise ist die heterocyclische Verbindung (C) aus Triazinen ausgewählt.

[0047] Weiter ist bevorzugt, dass die Triazine Verbindungen umfassen, welche zumindest eine Aminogruppe aufweisen.

[0048] Weiter sind die Triazine bevorzugt eine Verbindung aus der Gruppe von Melamin, Acetoguanamin und Benzoguanamin.

[0049] Die siebte Erfindung stellt eine flammhemmende Harzzusammensetzung zur Verfügung, welche zumindest ein flammhemmendes Epoxidharzmaterial der sechsten Erfindung enthält.

[0050] Vorzugsweise ist weiter ein aromatisches, wärmehärtbares Harz enthalten, welches aromatische Ringe in der Hauptkette aufweist.

[0051] Weiter ist bevorzugt, dass das aromatische, wärmehärtbare Harz ein Epoxidharz mit einer Novolak-Struktur umfasst.

[0052] Es ist ferner bevorzugt, dass das aromatische, wärmehärtbare Harz ein Phenolharz mit einer Novolak-Struktur umfasst.

[0053] Bevorzugt ist ferner, dass das aromatische, wärmehärtbare Harz ein Phenolaralkyl-Epoxidharz umfasst, welches aromatische Ringe in der Novolak-Struktur der Hauptkette aufweist.

[0054] Ferner ist bevorzugt, dass das Phenolaralkyl-Epoxidharz zumindest ein Biphenylderivat oder ein Phenylenderivat in der Novolak-Struktur der Hauptkette enthält.

[0055] Es ist auch bevorzugt, dass das aromatische, wärmehärtbare Harz ein Phenolaralkyl-Phenolharz umfasst, welches aromatische Ringe in der Novolak-Struktur der Hauptkette aufweist.

[0056] Weiter ist bevorzugt, dass das Phenolaralkyl-Phenolharz zumindest ein Biphenylderivat oder ein Phenylenderivat in der Novolak-Struktur der Hauptkette aufweist.

[0057] Es ist auch bevorzugt, ein aromatisches, thermoplastisches Harz beizufügen, welches aromatische

Ringe im Gerüst der Hauptkette aufweist.

[0058] Die achte Erfindung stellt eine Halbleitervorrichtung zur Verfügung, welche ein Abdichtharz aufweist, das eine flammhemmende Harzzusammensetzung der siebten Erfindung enthält.

[0059] Die neunte Erfindung stellt eine Leiterplatte zur Verfügung, welche einen Isolator aufweist, der eine flammhemmende Harzzusammensetzung der siebten Erfindung enthält.

[0060] Die zehnte Erfindung stellt einen formbaren Werkstoff zur Verfügung, welcher eine flammhemmende Harzzusammensetzung der siebten Erfindung enthält.

[0061] Die Erfindung stellt daher ein flammhemmendes Phenolharz-Material zur Verfügung, welches ein kondensiertes Phenol enthält, wobei eine polyaromatische Verbindung, die durch eine Reaktion von Phenolen (A) mit Aromaten (B), welche nicht Phenole umfassen, sowie mit heterocyclischen Verbindungen (C), welche Stickstoff als Heteroatom enthalten, durch Aldehyde (D) kondensiert wird.

[0062] Die Erfindung stellt ferner ein flammhemmendes Epoxidharzmaterial zur Verfügung, welches ein Epoxidharz enthält, dass durch Glycidyl-Veretherung zumindest eines Teils der phenolischen Hydroxylgruppen einer polyaromatischen Verbindung erhalten wurde, welche erhalten wurde durch Reaktion von Phenolen (A) mit Aromaten (B), welche nicht Phenole umfassen, sowie mit einer heterocyclischen Verbindung (C), welche Stickstoff als Heteroatom enthält, welche durch Aldehyde (C) kondensiert wurden.

[0063] Die Erfindung stellt auch eine flammhemmende Harzzusammensetzung zur Verfügung, welche ein flammhemmendes Phenolharzmaterial enthält, welches ein Phenolkondensat enthält, wobei eine polyaromatische Verbindung, welche durch Reaktion von Phenolen (A) mit Aromaten (B), welche nicht Phenole umfassen, und einer heterocyclischen Verbindung (C), welche Stickstoff als Heteroatom enthält, erhalten wurde, mit Aldehyden (D) kondensiert wird.

[0064] Die Erfindung stellt weiter eine flammhemmende Harzzusammensetzung zur Verfügung, welche ein flammhemmendes Epoxidharzmaterial umfasst, welche ein Epoxidharz umfasst, dass durch Glycidyl-Veretherung zumindest eines Teils der phenolischen Hydroxylgruppen einer polyaromatischen Verbindung erhalten wird, welche erhalten wurde durch Reaktion eines Phenols (A) mit Aromaten (B), wobei Phenole nicht umfasst sind, sowie einer heterocyclischen Verbindung (C), welche Stickstoff als Heteroatom enthält, wobei diese durch Aldehyde (D) kondensiert werden.

[0065] Die oben beschriebene flammhemmende Harzzusammensetzung kann ein aromatisches wärmehärtbares Harz enthalten, welches in seiner Hauptkette einen aromatischen Ring aufweist.

[0066] Durch die Erfindung wird weiter ein Halbleiterbauelement zur Verfügung gestellt, in welchem ein isolierendes Harz verwendet wird, welches die oben beschriebene flammhemmende Harzzusammensetzung enthält.

[0067] Die Erfindung stellt weiter ein elektronisches oder elektrisches Bauteil zur Verfügung, welches ein Halbleiterbauelement enthält, in welchem ein isolierendes Harz verwendet wird, welches die oben beschriebene flammhemmende Harzzusammensetzung enthält.

[0068] Durch die Erfindung wird weiter eine Leiterplatte zur Verfügung gestellt, in welcher als Isolator ein Material verwendet wird, welches die oben beschriebene flammhemmende Harzzusammensetzung enthält.

[0069] Durch die Erfindung wird weiter ein formbarer Werkstoff zur Verfügung gestellt, welcher ein flammhemmendes wärmehärtbares Harz enthält, welches die oben beschriebene flammhemmende Harzzusammensetzung umfasst.

[0070] In dieser Beschreibung bedeutet, "flammhemmendes Phenolharz-Material" ein Phenolharzmaterial, wobei ein Phenolkondensat mit der oben beschriebenen Struktur gegebenenfalls mit anderen Phenolharzen vermischt sein kann. Unter einem "flammhemmenden Epoxidharz-Material" wird ein Epoxidharz-Material verstanden, wobei ein Epoxidharz mit der oben beschriebenen Struktur gegebenenfalls mit weiteren Epoxidharzen vermischt sein kann. Eine "flammhemmende Harzzusammensetzung" umfasst die oben beschriebenen flammhemmenden Phenolharzmaterialen und/oder die oben beschriebenen flammhemmenden Epoxidharzmaterialen, welche gegebenenfalls mit Füllstoffen, Flammschutzmitteln, wie Metallhydroxiden, Phosphor-Verbindungen, mit Ausnahme von Halogen-Verbindungen, oder anderen Additiven vermischt sein können.

[0071] Die erfindungsgemäßen Phenolharz-Materialien sowie die flammhemmenden Epoxidharz-Materialien werden im Weiteren als "flammhemmende Harzmaterialen" bezeichnet. Das flammhemmende Harzmaterial umfasst die Aromaten (B) und die heterocyclischen Verbindungen (C) in seiner kondensierten Form, weshalb das flammhemmende Harzmaterial im Vergleich zu bisher bekannten flammhemmenden Harzmaterialen ausgezeichnete flammhemmende Eigenschaften aufweist.

[0072] Sofern in Übereinstimmung mit dem Stand der Technik das flammhemmende Harzmaterial, welches ein Molekülgerüst aufweist, welches heterocyclische Verbindungen (C) enthält, die als Heteroatom Stickstoffatome enthalten, zur Harzzusammensetzung gegeben wird, werden nicht brennbare Stickstoffgase bei der Entflammung erzeugt, wodurch die nicht entflammbaren Gase in die Atmosphäre abgegeben werden und nur eine unzureichende flammhemmende Wirkung erreicht wird. Um eine ausreichende flammhemmende Wirkung zu erreichen, ist es erforderlich, die stickstoffhaltigen nicht-entflammbaren Gase in großen Mengen zu erzeugen. Die Quelle für die stickstoffhaltigen flammhemmenden Gase ist der Triazinring. Wird der Anteil der Trian-

zininge in der Harzzusammensetzung erhöht, verschlechtert sich die thermische Stabilität beziehungsweise die Widerstandsfähigkeit gegen thermische Zersetzung, wodurch sich auch die flammhemmende Wirkung verschlechtert und weiter auch die Beständigkeit gegen Feuchtigkeit sowie andere Eigenschaften verschlechtert werden.

[0073] Erfindungsgemäß wird das flammhemmende Harzmaterial, welches sowohl Aromaten (B) wie auch heterocyclische Verbindungen (C) in der kondensierten Struktur enthält, zur Harzzusammensetzung gegeben, um einen neuen flammhemmenden Mechanismus zu erhalten, welcher sich von der bisher verwendeten Technik unterscheidet.

[0074] Der neue flammhemmende Mechanismus wird im Weiteren anhand eines Beispiels eines wärmehärtbaren Harzes beschrieben, welches das flammhemmende Harzmaterial enthält.

[0075] Das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial enthält Aromaten (B). Die das flammhemmende Harzmaterial enthaltende flammhemmende Harzzusammensetzung weist in der wärmehärtbaren Harzzusammensetzung nur einen geringen Vernetzungsgrad auf, weshalb die bei einer Entflammung der Harzzusammensetzung entstehenden Zersetzungsgase die Oberfläche der Harzzusammensetzung aufblähen und eine Schaumschicht ausgebildet wird. Die Zugabe der oben beschriebenen flammhemmenden Harzzusammensetzung bewirkt, dass die Schaumschicht Phenole enthält, welche eine sehr hohe thermische Stabilität beziehungsweise eine hohe Beständigkeit gegen thermische Zersetzung aufweisen, sowie aromatische Derivate beziehungsweise Polyaromaten, weshalb die Harzzusammensetzung eine hohe Hitzebeständigkeit aufweist, welches ein Zusammenfallen des Schaumes verhindert. Sauerstoff beziehungsweise Hitze werden durch die Schaumschicht abgeschirmt, wodurch eine hohe flammhemmende Wirkung erreicht wird.

[0076] Zusätzlich zu den aromatischen Verbindungen (B) wird die heterocyclische Verbindung (C) in das Molekülgerüst der flammhemmenden Harzzusammensetzung eingeführt, um nicht nur die Ausbreitung des Feuers zu unterdrücken sondern auch um die Schaumschicht zu erzeugen, um das Feuer zurückdrängen, um auf diese Weise eine höhere flammhemmende Wirkung zu erreichen. Die erfindungsgemäße flammhemmende Harzzusammensetzung enthält nämlich die heterocyclische Verbindung (C). Bei einer Entflammung werden die stickstoffhaltigen nicht-entflammbaren Gase erzeugt. Ein Teil der erzeugten Gase wandert in die Atmosphäre ab, während der verbleibende Anteil in der Schaumschicht enthalten ist. Die mit den stickstoffhaltigen nicht-entflammbaren Gasen angefüllte Schaumschicht verhindert nicht nur eine Ausbreitung des Feuers sondern drängt das Feuer auch zurück. Dieser Mechanismus wird unter Bezugnahme auf die Zeichnung erläutert. **Fig. 1A** zeigt schematisch eine Erläuterung eines flammhemmenden Mechanismus einer flammhemmenden Harzzusammensetzung, welche eine Schaumschicht umfasst, welche keine stickstoffhaltigen flammhemmenden Gase enthält. Ein Harzprodukt 1 wird an seiner linken Ecke angesengt oder entflammt und die Flammenfront 3 bewegt sich in Richtung auf eine Schaumschicht 2, welche die Ausbreitung des Feuers unterdrückt. Wird die Flammenfront 3 nahe der Schaumschicht 2 erzeugt, fällt ein Teil des Schaumes zusammen, wodurch eine Ausbreitung des Feuers nicht mehr unterdrückt werden kann. **Fig. 1B** zeigt schematisch eine Darstellung eines flammhemmenden Mechanismus einer flammhemmenden Harzzusammensetzung, welche eine Schaumschicht umfasst, die mit einem stickstoffhaltigen nicht-entflammbaren Gas gefüllt ist. Ein Harzprodukt 1' wird an seiner linken Kante angesengt oder entflammt und eine Flammenfront 3' breitet sich in Richtung auf eine Schaumschicht 2 aus, welche das Feuer verringert. Entsteht die Flammenfront 3 nahe der Schaumschicht 2, zerfällt ein Teil des Schaumes, wodurch die stickstoffhaltigen Gase 4 in das Feuer eingebracht werden und das Feuer wird durch die stickstoffhaltigen Gase verringert. Die Schaumschicht 2' dient als Vorratsschicht für einen Vorrat des stickstoffhaltigen flammhemmenden Gases 4', welches das Feuer auslöschen kann. Die wärmehärtbare Harzzusammensetzung, welche das flammhemmende Harzmaterial enthält, besitzt eine bessere flammhemmende Wirkung als herkömmliche Harzzusammensetzungen. Es ist auch möglich, durch das flammhemmende Harzmaterial eine verstärkte flammhemmende Wirkung bei einer Harzzusammensetzung zu erreichen, welche als Basis ein aromatisches wärmehärtbares Harz enthält, das in seiner Hauptkette aromatische Ringe enthält, wie beispielsweise ein Epoxidharz, welches eine Novolak-Struktur aufweist und/oder eine Epoxidharzzusammensetzung, welche als Basis ein Epoxidharz enthält, welches eine Novolak-Struktur aufweist, insbesondere ein Epoxidharz vom Phenolaralkyltyp mit aromatischen Ringen in der Hauptkette einer Novolak-Struktur und/oder ein Phenolharz vom Phenolaralkyltyp mit aromatischen Ringen in der Hauptkette der Novolak-Struktur. Das aromatische wärmehärtbare Harz, welches in seiner Hauptkette aromatische Ringe aufweist, besitzt eine hohe thermische Stabilität und zeigt eine hohe Kompatibilität mit dem flammhemmenden Harzmaterial, wodurch bei Entflammung eine gleichmäßige und stabile Schaumschicht erzeugt werden kann. Eine besonders stabile Schaumschicht kann durch Verwendung eines Epoxidharzes erreicht werden, welches eine Novolak Struktur enthält und/oder durch eine Epoxidharzzusammensetzung, welche als Basis ein Epoxidharz enthält, welches eine Novolak-Struktur aufweist, insbesondere ein Epoxidharz vom Phenolaralkyltyp, welches in der Hauptkette der Novolak-Struktur aromatische Ringe aufweist, und/oder ein Phenolharz vom Phenolaralkyltyp, welches in der Hauptkette der Novolak-Struktur aromatische Ringe enthält.

[0077] Das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial enthält sowohl Aromaten (B) als auch heterocyclische Verbindungen (C) in der gleichen kondensierten Struktur, so dass die Harzzusammensetzung, wel-

che das flammhemmende Harzmaterial enthält, eine hohe flammhemmende Wirkung sowie eine hohe Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit aufweist. Enthält im Unterschied zur Erfindung die Harzzusammensetzung ein Molekülgerüst, welches Aromaten (B) umfasst, sowie ein weiteres Molekülgerüst, welches die heterocyclische Verbindung (C) enthält, weist dieses nicht sowohl eine hohe flammhemmende Wirkung wie auch eine hohe Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit auf. Beispielsweise weist eine Harzzusammensetzung, die ein Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz mit einer Biphenylgruppe im Molekülgerüst und ein Phenolharz mit Triazinringen umfasst, nicht eine ausreichend hohe flammhemmende Wirkung und Beständigkeit gegenüber von Feuchtigkeit auf. Die hohe flammhemmende Wirkung und die hohe Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit des erfindungsgemäßen flammhemmenden Harzmaterials kann durch die Einführung der Aromaten (B) erreicht werden, welche sowohl eine hohe thermische Stabilität beziehungsweise eine Stabilität gegen thermische Zersetzung wie auch eine Hydrophobie aufweisen. Die Zugabe der Harzzusammensetzung, welche ein flammhemmendes Harzmaterial enthält, das erfindungsgemäß Aromaten (B) und die heterocyclische Verbindung (C) im selben Kondensat enthält, bewirkt eine Verbesserung sowohl der flammhemmenden Wirkung wie auch der Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit.

[0078] Die Beschreibung des Mechanismus der flammhemmenden Wirkung des flammhemmenden Harzmaterials erfolgte als ein Beispiel anhand einer wärmehärtbaren Harzzusammensetzung. Das oben beschriebene neue flammhemmende Harzmaterial kann natürlich auch mit thermoplastischen Harzzusammensetzungen verwendet werden, um so eine hohe flammhemmende Wirkung zu erreichen. Ähnlich wie die oben beschriebene wärmehärtbare Harzzusammensetzung entwickelt die das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial enthaltende thermoplastische Harzzusammensetzung bei Entflammung eine Schaumschicht, wobei die Schaumschicht eine sehr hohe thermische Stabilität beziehungsweise eine sehr hohe Widerstandsfähigkeit gegen thermische Zersetzung aufweist, wodurch die thermoplastische Harzzusammensetzung ausgeprägte flammhemmende Eigenschaften erhält. Die das flammhemmende Harzmaterial, welches sowohl Aromaten (B) wie auch heterocyclische Verbindungen (C) im selben Kondensat enthält, enthaltende thermoplastische Harzzusammensetzung erreicht eine hohe Wirksamkeit. Die Kombination der Aromaten im flammhemmenden Harzmaterial ist mit den aromatischen Ringen verträglich, weshalb die aromatische thermoplastische Harzzusammensetzung mit Aromaten in der Hauptkette in Bezug auf die Verbesserung der Flammhemmung bevorzugt ist.

[0079] Erfindungsgemäß unterliegen die Phenole (4) keinen besonderen Beschränkungen, sofern sie eine aromatische Verbindung mit einer Hydroxylgruppe darstellen. Beispielsweise kann als Phenol (A) verwendet werden: Phenol, Naphtole, wie  $\beta$ -Naphthol und b-Naphthol, Phenole vom Bisphenol-Fluorentyp, Alkylphenole, wie Kresol, Xylenol, Ethylphenol, Butylphenol, Nonylphenol sowie Octylphenol, mehrwertige Phenole, wie Bisphenol A, Bisphenol F, Bisphenol S, Resorcin und Catechol, Phenylphenol, sowie Aminophenol. Die Phenole können allein oder in Kombination verwendet werden.

[0080] Erfindungsgemäß umfassen die Aromaten (B) einen oder mehrerer aromatische Verbindungen, wobei die oben beschriebenen Phenole (A) nicht umfasst sind. Die Aromaten (B) unterliegen an sich keiner Beschränkung außer dass die Aromaten (B) chemisch mit den Phenolen (A) reagieren und mit diesen verbunden werden. Vorzugsweise weisen die Aromaten (B) die folgende chemische Formel (1) auf



(1)

wobei  $\text{R}_1$  ausgewählt ist aus der Gruppe von Biphenylderivaten, Phenylenderivaten, Naphtalinderivaten, Biphenylderivaten, Fluorenderivaten, Bisphenol-Fluorenderivaten, sowie Anthracenderivaten, und X ausgewählt ist aus der Gruppe von Halogenatomen, Hydroxylgruppen und Alkoxygruppen mit nicht mehr als 10 Kohlenstoffatomen.

[0081] Unter Biphenylderivaten wird eine zweiwertige Gruppe verstanden, welche von substituiertem oder unsubstituiertem Biphenyl abgeleitet ist. Ein substituiertes Biphenyl kann beispielsweise mit Kohlenwasserstoffgruppen substituiert sein, welche eine Kettenstruktur ausweisen, welche ungesättigte Bindungen sowie 1 bis 6 Kohlenstoffatome aufweisen, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit eins bis sechs Kohlenstoffatomen.

[0082] Unter einem Phenylderivat wird eine zweiwertige Gruppe verstanden, welche sich von substituiertem oder unsubstituiertem Phenyl ableitet. Das substituierte Phenyl kann beispielsweise kettenförmige Kohlenwasserstoffgruppen umfassen, welche auch ungesättigte Bindungen und 1 bis 6 Kohlenstoffatome enthalten können, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen. Die Phenylenderivate umfassen von Diphenylether abgeleitete zweiwertige Gruppen, von Bisphenol A abgeleitete zweiwertige Gruppen, von Bisphenol F abgeleitete zweiwertige Gruppen, sowie von Bisphenol S abgeleitete zweiwertige Gruppen.

[0083] Unter einem Naphtalinderivat wird eine zweiwertige Gruppe verstanden, welche von substituiertem oder unsubstituiertem Naphtalin abgeleitet ist. Die Substituenten des Naphtalin können beispielsweise kettenförmige ungesättigte Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen sein, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

[0084] Unter Biphenylenderivaten wird eine zweiwertige Gruppe verstanden, welche sich von substituiertem oder unsubstituiertem Biphenylen ableitet. Der Substituent des Biphenylens kann beispielsweise eine kettenförmige ungesättigte Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen sein, wie Allylgruppe, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

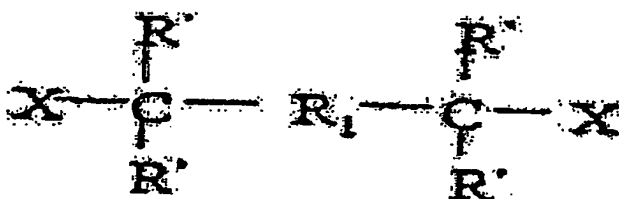
[0085] Unter Fluorenderivaten werden zweiwertige Gruppen verstanden, welche von substituiertem oder unsubstituiertem Fluoren abgeleitet sind. Die Substituenten des Fluoren können beispielsweise kettenförmige ungesättigte Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen sein, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

[0086] Unter Bis-Phenolfluorenderivaten werden zweiwertige Gruppen verstanden, welche von substituiertem oder unsubstituiertem Bis-Phenolfluoren abgeleitet sind. Die Substituenten des Bis-Phenolfluoren können beispielsweise kettenförmige ungesättigte Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen sein, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

[0087] Unter Anthracenderivaten werden 2-wertige Gruppen verstanden, welche von substituiertem oder unsubstituiertem Anthracen abgeleitet sind. Die Substituenten des Anthracen können beispielsweise kettenförmige ungesättigte Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen sein, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

[0088] Vorzugsweise ist  $R_1$  ausgewählt aus Biphenylenderivaten, Phenylenderivaten, wodurch eine wärmehärtbare Harzzusammensetzung mit einem niedrigen Vernetzungsgrad erhalten werden kann. Bei Entflammung wird eine Schaumschicht in Form eines Gummis ausgebildet, welche sehr widerstandsfähig gegen thermische Zersetzung ist. Biphenyl sowie dessen Derivate sowie Phenylen und dessen Derivate weisen sehr gute hydrophobe Eigenschaften auf, weshalb deren Einführung eine wesentliche Verbesserung der Beständigkeit der Harzzusammensetzung gegenüber Feuchtigkeit bewirkt.

[0089] Die Aromaten (B) unterliegen keinen Beschränkungen, unter der Voraussetzung, dass die Aromaten (B) chemisch mit den Phenolen (A) umgesetzt und an diese gebunden werden. Die Aromaten (B) können eine Verbindung der folgenden allgemeinen Formel (1) sein.



allgemeine Formel (1)

wobei ein an ein Kohlenstoffatom der Methylenkette ( $-\text{CH}_2-$ ) gebundenes Wasserstoffatom durch einen weiteren Substituenten ( $R'$ ) substituiert ist. Dieser Substituent ( $R'$ ) kann beispielsweise eine Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen und/oder eine Alkoxygruppe mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen sowie ein von anderen Kohlenwasserstoffen abgeleitetes Polymer sein.

[0090] Erfindungsgemäß wirkt die heterocyclische Verbindung (C), welche als Heteroatom Stickstoff enthält, als Quelle für das flammhemmende Gas. Die heterocyclische Verbindung (C) umfasst ein oder mehrere Stickstoffatome und kann gegebenenfalls weitere Atome als Heteroatom enthalten, wie Schwefel. Insbesondere ist bevorzugt, dass die heterocyclische Verbindung (C), welche Stickstoff als Heteroatom enthält, ein Triazin ist. Unter Triazinen werden Verbindungen verstanden, welche ein oder mehrere Triazinringe umfassen, um in großen Mengen flammhemmendes stickstoffhaltiges Gas entwickeln zu können.

[0091] Vorzugsweise umfassen die Triazine zumindest eine Aminogruppe, so dass die Triazine und die Polyaromaten, welche durch Reaktion der Phenole (A) mit den Aromaten (B), wobei Phenole ausgeschlossen sind, erhalten wurden, leicht durch die Aldehyde (D) kondensiert werden können.

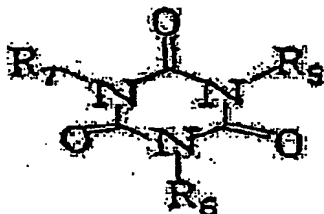
[0092] Vorzugsweise weisen die Triazine die folgende allgemeine Formeln (2) und (3) auf, um in großen Mengen flammhemmendes stickstoffhaltiges Gas entwickeln zu können.



allgemeine Formel (2)

wobei  $R_2$ ,  $R_3$  und  $R_4$  jeweils ausgewählt ist aus Aminogruppen, Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, un-

gesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Nitrilgruppen, Thiolgruppen, Halogenatomen. Vorzugsweise sind die Gruppen  $R_2$ ,  $R_3$  und  $R_4$  Alkylgruppen, wobei die Anzahl der Alkylgruppen in der Formel nicht größer als zwei ist und die anderen Gruppen durch die oben beschriebenen reaktiven funktionellen Gruppen gebildet sind.



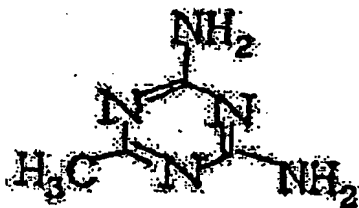
allgemeine Formel (3)

wobei  $R_5$ ,  $R_6$  und  $R_7$  ausgewählt ist aus Wasserstoffatom, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Phenylgruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Nitrilgruppen, Halogenatomen. Vorzugsweise sind  $R_5$ ,  $R_6$  und  $R_7$  Alkylgruppen, wobei die Anzahl der Alkylgruppen in der Formel nicht mehr als zwei beträgt und die anderen Gruppen aus den oben beschriebenen reaktiven funktionellen Gruppen ausgewählt sind.

[0093] Vorzugsweise ist zumindest eine der Gruppen  $R_2$ ,  $R_3$  und  $R_4$  eine Aminogruppe. Die durch die allgemeine Formel (2) wiedergegebenen Verbindungen können beispielsweise Triazinderivate wie Benzoguanamin, Acetoguanamin und Melamin sein, Cyanursäurederivate, wie Cyanursäure, mit Methylcyanurat, Ethylcyanurat, Acetylcyanurat, Cynursäurechlorid. Besonders bevorzugt ist das Triazinderivat ein Benzoguanamin (der folgenden allgemeinen Formel (4)), ein Acetoguanamin (der folgenden allgemeinen Formel (5)), ein Melamin (der folgenden allgemeinen Formel (6)) Benzoguanamin ist besonders bevorzugt, da diese Verbindung ermöglicht, dass die heterocyclische Verbindung (C) kompatibel mit den polyaromatischen Verbindungen ist, welche durch die Reaktion der Phenole (A) mit den Aromaten (B), wobei Phenole ausgeschlossen sind, und mit den Aldehyden (D) erhalten werden, wodurch eine sehr gute Reaktion sowie eine Verbesserung der Beständigkeit des flammhemmendes Harzmaterials gegenüber Feuchtigkeit erreicht wird.



allgemeine Formel (4)



allgemeine Formel (5)



allgemeine Formel (6)

[0094] Bevorzugt ist zumindest eine der Reste  $R_5$ ,  $R_6$  und  $R_7$  ein Wasserstoffatom. Die Verbindungen der allgemeinen Formel (3) können beispielsweise Isocyanursäurederivate sein, wie Isocyanursäure, Methylisocyanurat, Methylisocyanurat, Ethylisocyanurat, Allylisocyanurat, 2-Hydroxyethylisocyanurat, 2-Carboxylethylisocyanurat, Isocyanursäurechlorid. Besonders bevorzugt werden alle Reste  $R_5$ ,  $R_6$  und  $R_7$  durch Wasserstoffatome gebildet. Die durch die allgemeine Formel (2) wiedergegebene Cyanursäure ist als Tautomer dieser Verbindungen ebenfalls bevorzugt.

[0095] Die Verbindungen der allgemeinen Formeln (2) und (3) können allein oder in Kombination verwendet werden.

[0096] Erfindungsgemäß sind die Aldehyde (D) nicht beschränkt, wobei jedoch Formaldehyd wegen der einfachen Verarbeitung bevorzugt ist. Bevorzugte Quellen sind beispielsweise Formalin und Paraformaldehyd.

[0097] Das erfindungsgemäße flammhemmende Phenolharz-Material umfasst ein kondensiertes Phenol, in welchem die Komponenten (A), (B), (C) und (D) kondensiert sind. Das erfindungsgemäße flammhemmende Epoxidharz-Material umfasst ein Epoxidharz, wobei das kondensierte Phenol durch eine Glycidyl-Verbindung verethert ist.

[0098] Vorzugsweise ist in dem erfindungsgemäßen flammhemmenden Phenolharz-Material ein Epoxidharz enthalten, um eine Harzzusammensetzung zu erhalten, welche sehr gute Eigenschaften in Bezug auf die flammhemmende Wirkung, die Mischungsstabilität, die thermische Stabilität und die Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sowie andere Eigenschaften aufweist, wobei das erfindungsgemäße kondensierte Phenol als wärmehärtbares Agens für die Epoxidharzzusammensetzung wirkt.

[0099] Weiter ist bevorzugt, dass für das Epoxidharz ein wärmehärtbares Agens im erfindungsgemäßen flammhemmenden Epoxidharz-Material enthalten ist, um eine Harzzusammensetzung zu erhalten, die sehr gute Eigenschaften in Bezug auf die Flammhemmung, die Mischstabilität, die thermische Stabilität und die Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sowie andere Eigenschaften aufweist.

[0100] Das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial eignet sich insbesondere für die Flammhemmung einer Epoxidharzzusammensetzung. Das Epoxidharz und das wärmehärtbare Agens für das Epoxidharz dienen als Basismaterial der Epoxidharzzusammensetzung, welche das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial enthält. Als Epoxidharz und als wärmehärtbares Agens für das Epoxidharz kann ein Epoxidharz mit einer Novolak-Struktur sowie ein Phenolharz mit einer Novolak-Struktur verwendet werden. Insbesondere ist ein Epoxidharz vom Phenolaralkyltyp bevorzugt, welches in der Hauptkette der Novolak-Struktur aromatische Ringe aufweist, sowie ein Phenolharz vom Phenolaralkyltyp, welches in der Hauptkette der Novolak-Struktur aromatische Ringe enthält. Als Epoxidharz-Phenolaralkyltyp und als Phenolharz vom Phenolaralkyltyp wird als Basismaterial für die Epoxidharz zumindest eine Verbindung der Gruppe aus Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz, Phenolbiphenylaralkyl-Phenolharz, Phenolphenylenaralkyl-Epoxidharz, Phenolphenylenaralkyl-Phenolharz, Phenoldiphenylaralkyl-Epoxidharz, Phenoldiphenylaralkyl-Phenolharz, Naphtholaralkyl-Epoxidharz, Naphtholaralkyl-Phenolharz, Phenolanthracenaralkyl-Epoxidharz, sowie Phenolanthracenaralkyl-Phenolharz ausgewählt.

[0101] Die Verwendung des erfindungsgemäßen flammhemmenden Harzmaterials in Kombination mit einem Epoxidharz und/oder dem wärmehärtbaren Material für das Epoxidharz eignet sich besonders, um eine Harzzusammensetzung zur Verfügung zu stellen, welche sich als Isolationsmaterial für Halbleitervorrichtungen sowie als Isolator für gedruckte Leiterplatten eignet.

[0102] Das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial eignet sich auch dazu, anderen Harzzusammensetzungen als der Epoxidharzzusammensetzung flammhemmende Eigenschaften zu verleihen. Insbesondere ist das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial sehr gut kompatibel und lässt sich gleichmäßig verteilen. Das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial eignet sich für aromatische wärmehärtbare Harze, welche in der Hauptkette aromatische Ringe umfassen, beispielsweise Phenolharze, sowie Harzzusammensetzungen mit Polyestern als Basismaterial, sowie für aromatische thermoplastische Harze, welche in der Hauptkette aromatische Ringe aufweisen, wie beispielsweise Polycarbonat, Polystyrol, Co-Polymere (AB) von Acrylnitril und Styrol, Co-Polymere (ABS) von Acrylnitril, Butadien und Styrol, Polyphenylenether, Polybutylenterephthalat, Nylon, sowie Harzzusammensetzungen, welche als Basismaterialen Mischungen von zumindest zwei Polymeren umfassen. Das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial eignet sich auch für Harzzusammensetzungen, welche als Basismaterial Olefine enthalten, gegebenenfalls zusammen mit Dispersionsmitteln, um eine bessere flammhemmende Wirkung zu erreichen.

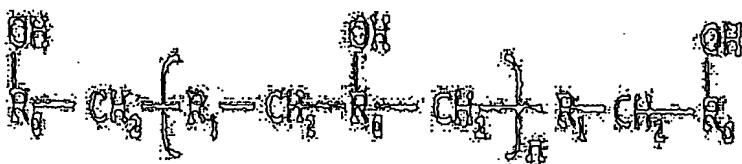
[0103] Das erfindungsgemäße flammhemmende Phenolharz-Material verwendet das Kondensat mit der speziellen Struktur, welche die oben beschriebenen Komponenten (A), (B), (C) und (D) in einem Molekül enthält, weshalb es keine Beschränkungen in Bezug auf das Molekulargewicht gibt. Im Phenolkondensat können mehrere Arten von Substanzen, welche unterschiedliche Molekulargewichte aufweisen, im Kondensat enthalten sein.

[0104] Im erfindungsgemäßen flammhemmenden Epoxidharz-Material wird ein Kondensat mit spezieller Struktur verwendet, welches die oben beschriebenen Komponenten (A), (B), (C) und (D) in einem Molekül enthält, weshalb es keine Beschränkungen im Molekulargewicht gibt. Im Epoxidharz können mehrere Arten von Substanzen, welche sich im Molekulargewicht unterscheiden, im Kondensat enthalten sein.

[0105] Die erfindungsgemäße flammhemmende Harzzusammensetzung kann sowohl ein flammhemmendes Phenolharz-Material als auch ein flammhemmendes Epoxidharz-Material oder beide Materialien enthalten. Die erfindungsgemäße flammhemmende Harzzusammensetzung kann vorzugsweise weiter ein aromatisches wärmehärtbares Harz enthalten, welches in seiner Hauptkette aromatische Ringe enthält, oder aromatische thermoplastische Harze, welche in der Hauptkette aromatische Ringe enthalten. Insbesondere bevorzugt ist, dass die erfindungsgemäße flammhemmende Harzzusammensetzung weiter das oben beschriebene aromatische wärmehärtbare Harz umfasst. Solche Harze weisen eine gute Verträglichkeit mit dem erfindungsgemäßen flammhemmenden Harzmaterial auf, weshalb bei Entflammung eine gleichmäßige und sehr stabile Schaumschicht erhalten werden kann, welche eine ausgezeichnete flammhemmende Wirkung aufweist. Umfasst das oben beschriebene aromatische wärmehärtbare Harz ein Epoxidharz, welches eine Novolak-Struktur aufweist, und/oder ein Phenolharz, welches eine Novolak-Struktur aufweist, beispielsweise wenn das oben beschriebene aromatische wärmehärtbare Harz ein Epoxidharz vom Phenolaralkyltyp umfasst, welches in der Hauptkette der Novolak-Struktur aromatische Ringe aufweist und/oder ein Phenolharz vom Phenolaralkyltyp, welches in der Hauptkette der Novolak-Struktur aromatische Ringe aufweist, kann eine deutlich verbesserte Wirkung bei der Flammhemmung erreicht werden. Vorzugsweise umfasst das oben beschriebene Epoxidharz vom Phenolaralkyltyp Biphenylderivate und/oder Phenylenderivate in der Hauptkette. Vorzugsweise werden solche aromatischen wärmehärtbaren Harze als Basismaterialien für die Harzzusammensetzung verwendet, um einen Verstärkungseffekt in der flammhemmenden Wirkung zu erreichen.

[0106] Es wird ein typischer Weg für die Herstellung des erfindungsgemäßen Phenolkondensates im Weiteren beschrieben, wobei jedoch auch andere Verfahren verwendet werden können.

[0107] Die Phenole (A) werden mit den Aromaten (B) unter Säurekatalyse umgesetzt, um eine Kondensationsreaktion auszulösen und ein Kondensat der folgenden allgemeinen Formel (7) herzustellen. Die oben beschriebene Kondensationsreaktion wird unter der Bedingung durchgeführt, dass das molare Verhältnis der Phenole (A) zu den Aromaten (B) im Bereich von 0.3 : 1 bis 20 : 1, vorzugsweise von 0.1 : 1 bis 15 : 1 eingestellt wird.



allgemeine Formel (7)

wobei "n" 0.0 bis 10, vorzugsweise 0.0 bis 3.0, insbesondere bevorzugt 0.0 bis 1.0 beträgt,  $R_6$ -OH ausgewählt ist aus Phenolderivaten, Naphtholderivaten, Derivaten von Polyphenol, wie Bisphenolfluoren-Derivaten, Bis-Phenol A, Bis-Phenol F, Bis-Phenol S, Resorcin und Catechol, sowie Derivaten von Alkylphenolen.

[0108]  $R_1$  ist ausgewählt aus Biphenylderivaten, Phenylenderivaten, Naphtalinderivaten, Biphenylderivaten, Fluorenderivaten, Bis-Phenolfluorenderivaten sowie Antracenderivaten.

[0109] Unter Biphenylderivaten wird eine zweiwertige Gruppe verstanden, welche sich von substituiertem oder unsubstituiertem Biphenyl ableitet. Die Substituenten des Biphenyl können beispielsweise kettenförmige ungesättigte Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen, wie Allylgruppen sein, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

[0110] Unter Phenylenderivaten wird eine zweiwertige Gruppe verstanden, welche sich von substituiertem oder unsubstituiertem Phenyl ableitet. Die Substituenten des Phenyl können beispielsweise ungesättigte kettenförmige Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen sein, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen. Die Phenylenderivate umfassen zweiwertige Gruppen, welche vom Diphenylether abgeleitet sind, zweiwertige Gruppen, welche vom Bis-Phenol A abgeleitet sind, zweiwertige Gruppen, welche vom Bis-Phenol F abgeleitet sind, sowie zweiwertige Gruppen, welche vom Bis-Phenol S abgeleitet sind.

[0111] Unter Naphtalinderivaten werden zweiwertige Gruppen verstanden, welche vom substituiertem oder unsubstituiertem Naphtalin abgeleitet sind. Die Substituenten des Naphtalin können beispielsweise ungesättigte kettenförmige Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen sein, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

[0112] Unter Biphenylderivaten werden zweiwertige Gruppen verstanden, welche von substituiertem oder unsubstituiertem Biphenylen abgeleitet sind. Die Substituenten des Biphenylen können beispielsweise ungesättigte kettenförmige Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen sein, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

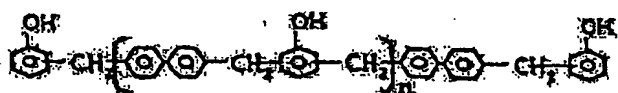
[0113] Unter Fluorenderivaten werden zweiwertige Gruppen verstanden, welche von substituiertem oder unsubstituiertem Fluoren abgeleitet sind. Die Substituenten des Fluoren können beispielsweise ungesättigte kettenförmige Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen sein, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

[0114] Unter Bis-Phenolfluorenderivaten werden zweiwertige Gruppen verstanden, welche von substituiertem

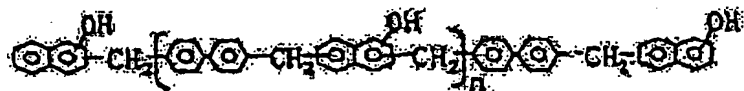
tem oder unsubstituiertem Bis-Phenolfluoren abgeleitet sind. Die Substituenten des Bis-Phenolfluoren können beispielsweise ungesättigte kettenförmige Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen sein, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

[0115] Unter Anthracenderivaten werden zweiwertige Gruppen verstanden, welche von substituiertem oder unsubstituiertem Anthracen abgeleitet sind. Die Substituenten des Anthracen können beispielsweise ungesättigte kettenförmige Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen sein, wie Allylgruppen, sowie Alkylgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen.

[0116] Dass durch die oben gezeigte allgemeine Formel (7) wiedergegebene Kondensat kann beispielsweise eine Verbindung sein, die durch die folgenden Formeln (8) bis (18) wiedergegeben sind, wobei keine Beschränkung auf diese Verbindungen beabsichtigt ist.



allgemeine Formel (8)



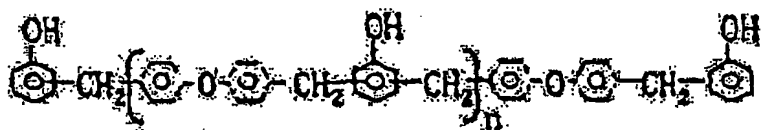
allgemeine Formel (9)



allgemeine Formel (10)



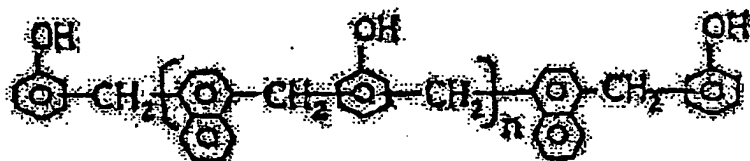
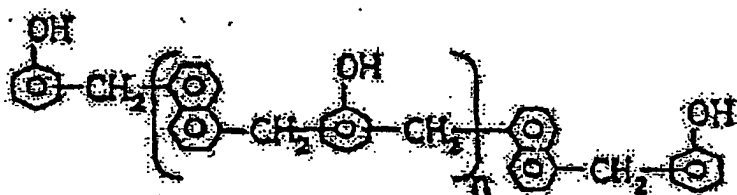
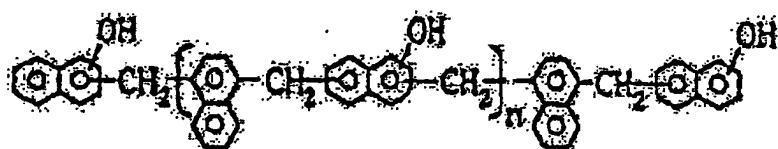
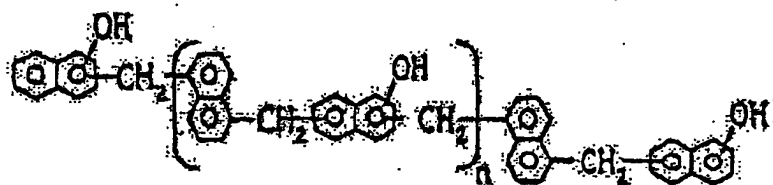
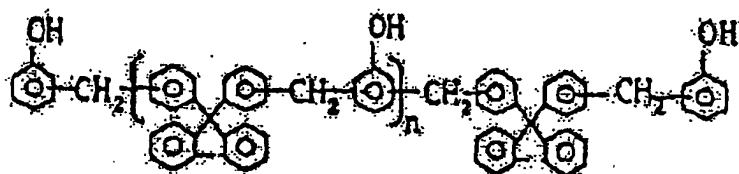
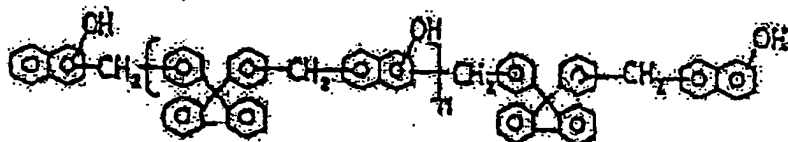
allgemeine Formel (11)



allgemeine Formel (12)



allgemeine Formel (13)

allgemeine Formel (14)allgemeine Formel (15)allgemeine Formel (16a)allgemeine Formel (16b)allgemeine Formel (17)allgemeine Formel (18)

[0117] Für die oben beschriebene Kondensationsreaktion; werden saure Katalysatoren verwendet. Es können unterschiedliche Arten saurer Katalysatoren verwendet werden, beispielsweise organische oder anorganische Säuren wie p-Toluolsulfonsäure, Schwefelsäure, Salzsäure, Oxalsäure, Lewis-Säuren, wie Bortrifluorid, wasserfreies Aluminiumchlorid, sowie Zinkchlorid, insbesondere bevorzugt sind p-Toluolsulfonsäure, Schwefelsäure, Salzsäure. Die Menge, in welcher der saure Katalysator verwendet wird, unterliegt an sich keinen Beschränkungen, wobei jedoch 0.1–30% bevorzugt sind.

[0118] Die oben beschriebene Kondensationsreaktion kann in Abwesenheit oder Anwesenheit organischer Lösungsmittel durchgeführt werden. Geeignete organische Lösungsmittel sind beispielsweise Methylcellosolve, Ethylcellosolve, Toluol, Xylol, Methylisobutylketon. Die Menge des verwendeten organischen Lösungsmittels beträgt im Allgemeinen 50–300 Gewichtsprozent, vorzugsweise 100–250 Gewichtsprozent bezogen auf das Gesamtgewicht der Ausgangsmaterialien. Die Reaktionstemperatur beträgt gewöhnlich 40–180°C. Die Reaktionszeit liegt im Allgemeinen im Bereich von 1–10 Stunden. Die organischen Lösungsmittel können allein oder in Kombination verwendet werden. Wasser oder Alkohol, welche während der Reaktion entstehen, werden bevorzugt durch fraktionierte Destillation entfernt, um die Reaktion voranzutreiben.

[0119] Nach der Reaktion wird mit Wasser gereinigt, bis das Waschwasser einen pH im Bereich von 3–7, vorzugsweise 5–7 aufweist. Für die wässrige Aufarbeitung können zum Neutralisieren basische Verbindungen verwendet werden, beispielsweise Alkalimetallhydroxide, wie Natriumhydroxid und Kaliumhydroxid, Erdalkalihydroxide, wie Calciumhydroxid und Magnesiumhydroxid, Ammoniak, Natrium-Dihydrogenphosphat, sowie organische Amine, wie Diethylentriamin, Triethyltetraamin, Anilin und Phenylendiamin. Die wässrige Aufarbeitung wird in der üblichen Weise ausgeführt. Beispielsweise wird die Reaktionsmischung zu einer wässrigen Lösung der oben angegebenen neutralisierenden Mittel gegeben, wobei die Extraktion mehrfach durchgeführt werden kann.

[0120] Nach der Neutralisation wird das Lösungsmittel sowie nicht abreagierte Verbindungen bei vermindertem Druck unter Erwärmen entfernt, um eine Kondensation des Produktes auszulösen, um ein Kondensat der oben angegebenen allgemeinen Formel (7) herzustellen.

[0121] Das durch die oben angegebene allgemeine Formel (7) dargestellte Kondensat, die heterocyclische Verbindung (C) mit Stickstoff als Heteroatom und die Aldehyde (D) werden bei einem pH im Bereich von 4–10, vorzugsweise im Bereich von 5–9, umgesetzt. Das durch die oben angegebene Formel (7) wiedergegebene Kondensat wird mit der ein Stickstoffatom als Heteroatom enthaltenden heterocyclischen Verbindung (C) über die Aldehyde (D) kondensiert, um ein kondensiertes Phenol zu erhalten. Diese Kondensationsreaktion kann mit oder ohne einen Katalysator durchgeführt werden. Die Katalysatoren unterliegen an sich keinen Beschränkungen, wobei jedoch basische Katalysatoren bevorzugt sind.

[0122] Ein basischer Katalysator kann beispielsweise ein Alkalimetallhydroxid, wie Natriumhydroxid und Kaliumhydroxid sein, ein Erdalkalimetallhydroxid, wie Bariumhydroxid, sowie ein Oxid dieser Alkalimetallhydroxide und Erdalkalimetallhydroxide, Ammoniak, primäre, sekundäre, tertiäre Amine, Hexamethylenetetraamin, sowie Natriumcarbonat. Wird das erfindungsgemäße Phenolharz als wärmehärtbares Agens für eine Epoxidharzzusammensetzung in elektrischen oder elektronischen Vorrichtungen verwendet, werden vorzugsweise Amine verwendet, um zu vermeiden, dass anorganische Verbindungen als Metallrückstände im Katalysator verbleiben.

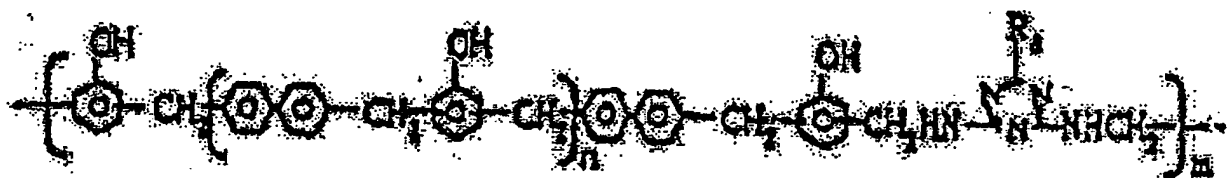
[0123] Der Ablauf der Reaktion unterliegt an sich keinen Beschränkungen. Es ist möglich, das Kondensat der oben angegebenen allgemeinen Formel (7) zunächst mit dem Aldehyd (D) und dann mit der heterocyclischen Verbindung (C) umzusetzen, welche Stickstoff als Heteroatom enthält. Es auch möglich, die heterocyclische Verbindung (C), welche ein Stickstoffatom als Heteroatom enthält, zunächst mit dem Aldehyd (D) umzusetzen, um dann das durch die oben angegebene Formel (7) dargestellte Kondensat zuzugeben. Es wäre auch möglich, das Kondensat der allgemeinen Formel (7), die heterocyclische Verbindung (C) und die Aldehyde (D) gleichzeitig zuzugeben, um die Reaktion durchzuführen. Das Molverhältnis des Kondensates der allgemeinen Formel (7) zur heterocyclischen Verbindung (C) und den Aldehyden (D) unterliegt keinen Beschränkungen, beträgt jedoch vorzugsweise 1: (0.1–10) : (0.1 : 10), und insbesondere bevorzugt 1: (0.2–5) : (0.2–5).

[0124] Um die Reaktion kontrollieren zu können, ist es auch möglich, die Reaktion in Gegenwart verschiedener Lösungsmittel durchzuführen. Die Lösungsmittel unterliegen an sich keinen Beschränkungen, wobei geeignete Lösungsmittel beispielsweise Aceton, Methyläthylketon, Toluol, Xylol, Methylisobutylketon, Ethylacetat, Ethylenglycolmonomethylether, N,N'-Dimethylformamid, Methanol und Ethanol sind. Diese Lösungsmittel können allein oder in Kombination verwendet werden.

[0125] Die Neutralisation und die wässrige Aufarbeitung kann ausgeführt werden, um Verunreinigungen wie Salze zu entfernen. Werden jedoch Amine als Katalysatoren verwendet, muss diese Aufarbeitung nicht durchgeführt werden. Nach der Reaktion werden nicht abreagierte Verbindungen sowie die Katalysatoren durch übliche Verfahren entfernt, wie eine Destillation unter Atmosphärendruck oder im Vakuum. Es ist erforderlich, eine Hitzebehandlung bei 120°C auszuführen, um das Harz im Wesentlichen frei von nicht abreagierten Aldehyden und Methylolgruppen zu erhalten. Eine Wärmebehandlung bei Temperaturen unterhalb von 120°C ist für eine vollständige Entfernung der Methylolgruppen ungeeignet. Eine Wärmebehandlung oberhalb von 120°C für eine ausreichende Dauer ist für eine vollständige Entfernung der Methylolgruppen geeignet. Vorzugsweise wird die Wärmebehandlung oberhalb von 150°C durchgeführt. Bei dieser hohen Temperatur kann vorzugsweise eine Destillation durchgeführt werden, um während der Erwärmung gleichzeitig die Novolakharze zu erhalten.

[0126] Das erfindungsgemäße Phenolharz kann als flammhemmendes Mittel der Harzzusammensetzung oder des wärmehärtbaren Agens verwendet werden. Beispiele des erfindungsgemäßen Phenolkondensats

sind durch die allgemeinen Formeln (19) bis (30) wiedergegeben.



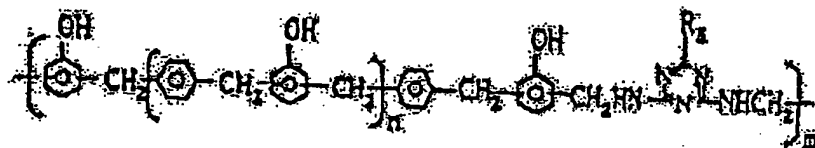
allgemeine Formel (19)

wobei  $R_2$  ausgewählt ist, aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



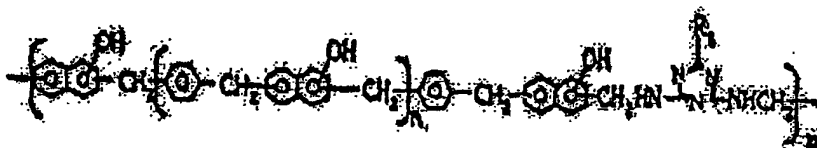
allgemeine Formel (20)

wobei  $R_2$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



allgemeine Formel (21)

wobei  $R_2$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



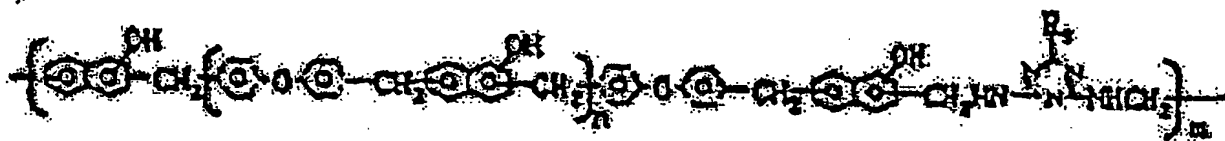
allgemeine Formel (22)

wobei  $R_2$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



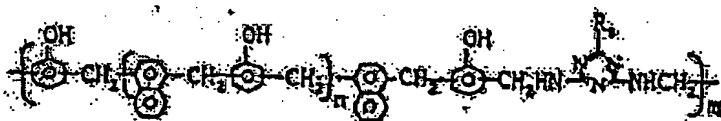
allgemeine Formel (23)

wobei  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



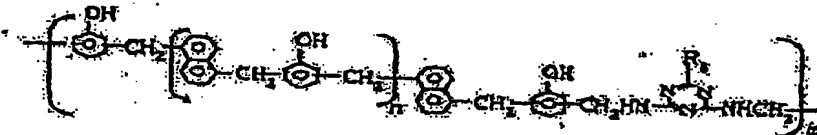
allgemeine Formel (24)

wobei  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



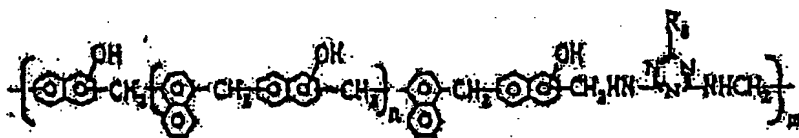
allgemeine Formel (25)

wobei  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



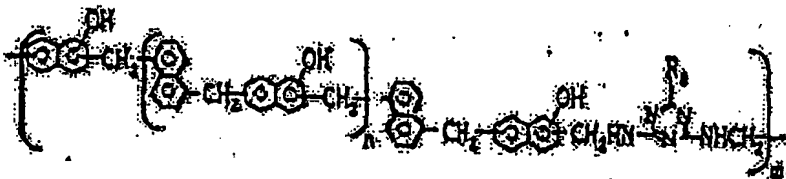
allgemeine Formel (26)

wobei  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



allgemeine Formel (27)

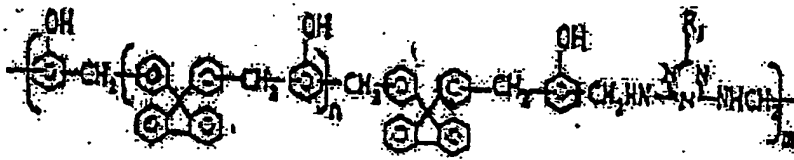
wobei  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



allgemeine Formel (28)

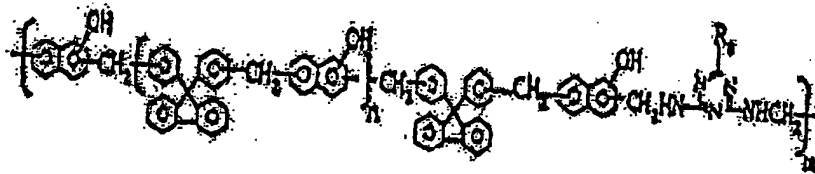
wobei  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen,

Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



allgemeine Formel (29)

wobei  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



allgemeine Formel (30)

wobei  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, sowie Nitrilgruppen, und "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt. [0127] Das Phenolkondensat enthaltende flammhemmende Harzmaterial kann als flammhemmendes Mittel in einer Harzzusammensetzung oder einem wärmehärtbaren Agens zusammen mit anderen Phenolharzen oder Aminverbindungen verwendet werden. Die für eine Kombination zur Verfügung stehenden Phenolharze unterliegen an sich keinen Beschränkungen, können jedoch beispielsweise sein Phenoldiphenylaralkylharze, Phenolphenylenaralkylharze, Phenolbiphenylaralkylharze, naphthalinhaltige Phenolharze, wie Naphtalaralkylharze, Phenoltriazinharze, zumindest ein oder eine Kombination von Biphenyl-4,4'-Dihydroxyether, sowie 3,3',5,5'-Tetramethyl Biphenyl-4,4'-Dihydroxyether, Tetraphenylölethan, Trisphenylölethan, Phenol-Novolakharze, Kresol-Novolakharze, Bis-Phenol A Harze, Bis-Phenol F Harze, Bis-Phenol S Harze, Polyphenol Harze, aliphatische Ester von Phenolharzen, cyclische aliphatische Ester von Phenolharzen, sowie mit Ether veresterte Phenolharze. Für die Kombination zur Verfügung stehende Aminverbindungen unterliegen keinen Beschränkungen, können jedoch beispielsweise sein Diaminodiphenylmethan, Diethylentriamin, sowie Diaminodiphenylsulfon. Diese Phenolharze und Aminharze können allein oder in Kombination verwendet werden. Phenolbiphenylaralkylharze, Phenolphenylenaralkylharze, Phenoldiphenylaralkylharze, sowie Naphtalaralkylharze sind insbesondere bevorzugt.

[0128] Im Weiteren wird das erfindungsgemäße flammhemmende Epoxidharz-Material beschrieben. Das in dem flammhemmenden Epoxidharz-Material enthaltene Epoxidharz kann durch Veretherung der phenolischen Hydroxylgruppen des flammhemmenden Phenolharzmaterials unter Verwendung jeder glycidylgruppenhaltigen Verbindung durchgeführt werden, welche an sich keiner Beschränkung unterliegt, durch welche jedoch eine Veretherung mit einer Glycidylgruppe ermöglicht ist. Geeignet sind beispielsweise Epichlorohydrine, wie Epichlorohydrin. Die Veretherung von im Wesentlichen allen phenolischen Hydroxylgruppen durch Glycidylgruppen ermöglicht es, Harzzusammensetzungen herzustellen, welche eine ausgezeichnete thermische Stabilität beziehungsweise Beständigkeit gegen thermische Zersetzung sowie eine hohe Feuchtigkeitsbeständigkeit aufweisen. Andere Verfahren als die Veretherung mit Glycidylgruppen, beispielsweise eine Epoxydierung der phenolischen Hydroxylgruppen des flammhemmenden Harzmaterials ist durch Verwendung anderer Verbindungen möglich, welche eine Epoxygruppe umfassen.

[0129] Für die Veretherung der phenolischen Hydroxylgruppen mit Glycidylgruppen kann das Phenolkondensat in einem Überschuss an Epichlorohydrin, wie Epichlorohydrin oder Epibromhydrin gelöst und mit diesem vermischt werden und anschließend ein Alkalimetallhydroxid, wie Kaliumhydroxid zugegeben werden, so dass eine Reaktion bei 20–120°C während 1 bis 10 Stunden bewirkt wird.

[0130] Das Alkalimetallhydroxid kann in flüssiger Form verwendet werden. In diesem Fall wird die Lösung des Alkalimetallhydroxids kontinuierlich zum Reaktionssystem gegeben und gleichzeitig Wasser und Epichlorohydrin

kontinuierlich unter niedrigem Druck oder Atmosphärendruck entfernt, um anschließend das Wasser abzutrennen und das Epihalohydrin wieder zurück in das Reaktionssystem zu führen.

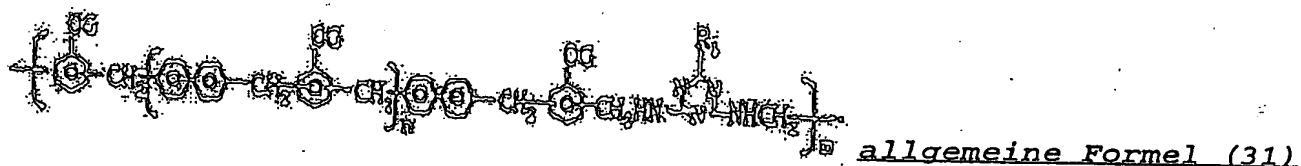
[0131] Der Mischung einer Lösung des Phenolkondensats und des Epihalohydrins kann als Katalysator ein quarternäres Ammoniumsalz zugegeben werden, wie Tetramethylammoniumchlorid, Tetramethylammoniumbromid und Trimethylbenzylammoniumchlorid, um während 1 bis 5 Stunden bei 50–150°C eine Reaktion durchzuführen, um einen Halohydrinether zu erhalten, ehe anschließend festes oder flüssiges Alkalimetallhydroxid zugegeben wird, um während 1–10 Stunden bei 20–120°C eine Dehydrohalogenierung durchzuführen. Das quarternäre Ammoniumsalz wird in Bezug zu den Hydroxylgruppen des Phenolkondensats in einer Menge von normalerweise 1–10 g, vorzugsweise 2–8 g hinzugegeben.

[0132] Normalerweise besteht das molare Verhältnis bei der Verwendung von Epihalohydrin in Bezug auf die Hydroxylgruppen des Phenolkondensats 1–20 Mol, vorzugsweise 2–10 Mol. Das molare Verhältnis bei der Verwendung von Alkalimetallhydroxiden in Bezug auf die Hydroxylgruppen des erfindungsgemäßen Phenolkondensats beträgt normalerweise 0.8–1.5 Mol, vorzugsweise 0.9–1.1 Mol. Um die Reaktion voranzutreiben ist es auch möglich, Alkohole, wie Methanol und Ethanol zuzugeben, aprotische polare Lösungsmittel, wie Dimethylsulfon und Dimethylsulfoxid. Die Menge der Alkohole bezogen auf das Epihalohydrin beträgt normalerweise 2–20 Gewichtsprozent, bevorzugt 4–15 Gewichtsprozent. Die Mengen des verwendeten aprotischen polaren Lösungsmittels in Bezug auf das Epihalohydrin beträgt normalerweise 5–100 Gewichtsprozent, vorzugsweise 10–90 Gewichtsprozent.

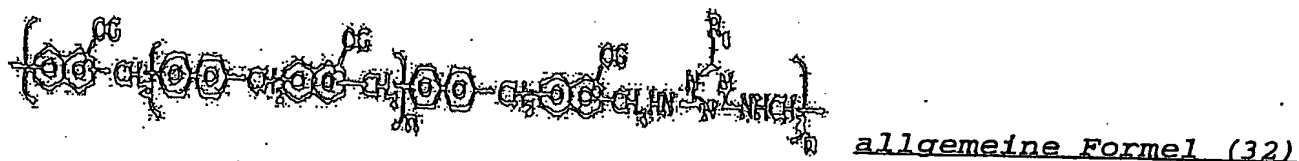
[0133] Nachdem das Reaktionsprodukt der Glycidyl-Veretherung mit Wasser gereinigt wurde, oder auch ohne den Reinigungsschritt mit Wasser, wird das Epihalohydrin sowie das verwendete Lösungsmittel bei einem Druck von nicht mehr als 10 mmHg bei 110–250°C entfernt. Um das Epoxidharz mit einer geringen Menge an hydrolytisch spaltbarem Halogen zu erhalten, wird das Epoxidharz in einem Lösungsmittel, wie Toluol und Methylisobutylketon aufgelöst und dann ein Alkalimetallhydroxid, wie Natriumhydroxid und Kaliumhydroxid zugegeben, um eine Ringschlussreaktion auszulösen. In diesem Fall beträgt das molare Verhältnis bei Verwendung von Alkalimetallhydroxiden in Bezug auf die Hydroxylgruppen des Phenolkondensats, welches für die Glycidylveretherung verwendet wurde, gewöhnlich 0.01–0.3 Mol, vorzugsweise 0.05–0.2 Mol. Die Reaktionstemperatur beträgt gewöhnlich 50–120°C, und die Reaktionszeit beträgt 0.5–2 Stunden.

[0134] Nach der Reaktion wird das Salz durch Filtration oder Reinigung mit Wasser entfernt, ehe anschließend das Lösungsmittel, wie Toluol und Isobutylketon entfernt werden, um das erfindungsgemäße flammhemmende Epoxidharzmaterial zu erhalten.

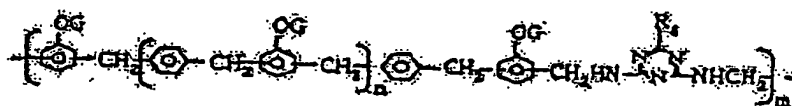
[0135] Einige Beispiele der oben beschriebenen Epoxidharze sind durch die folgenden allgemeinen Formeln (31) bis (42) wiedergegeben.



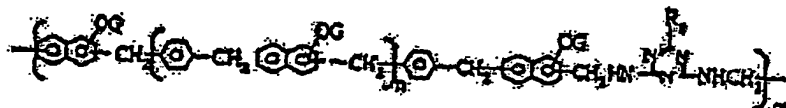
wobei G eine Glycidylgruppe ist, R<sub>n</sub> ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



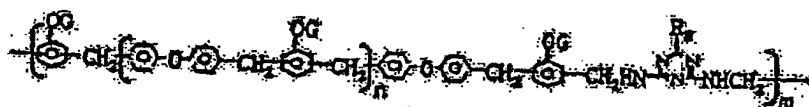
wobei G eine Glycidylgruppe ist, R<sub>n</sub> ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.

allgemeine Formel (33)

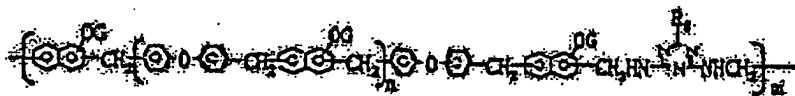
wobei G eine Glycidylgruppe ist,  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.

allgemeine Formel (34)

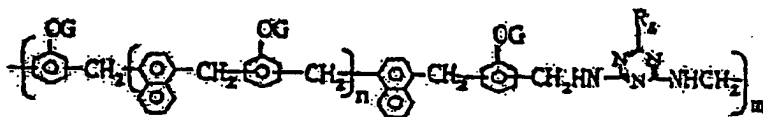
wobei G eine Glycidylgruppe ist,  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.

allgemeine Formel (35)

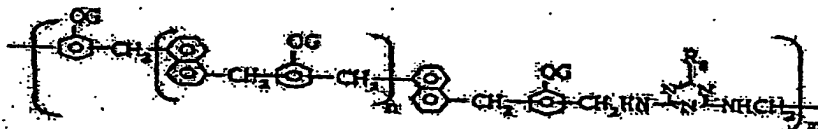
wobei G eine Glycidylgruppe ist,  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.

allgemeine Formel (36)

wobei G eine Glycidylgruppe ist,  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.

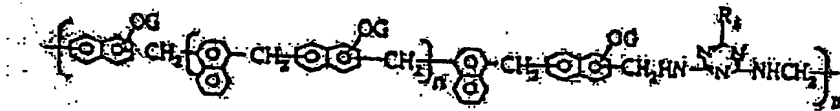
allgemeine Formel (37)

wobei G eine Glycidylgruppe ist,  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.

allgemeine Formel (38)

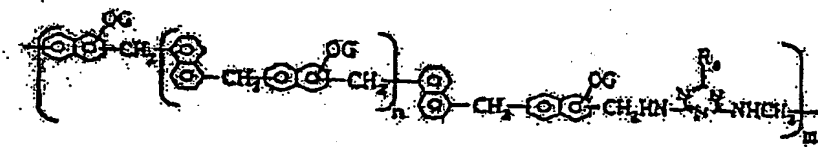
wobei G eine Glycidylgruppe ist,  $R_8$  ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.

tomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



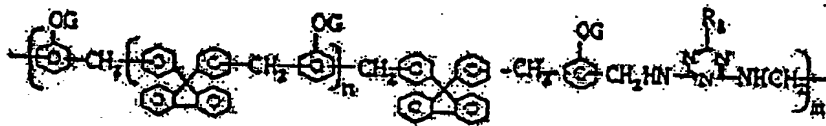
allgemeine Formel (39)

wobei G eine Glycidylgruppe ist, R<sub>8</sub> ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



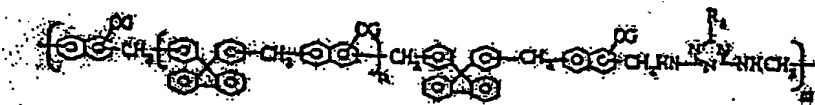
allgemeine Formel (40)

wobei G eine Glycidylgruppe ist, R<sub>8</sub> ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



allgemeine Formel (41)

wobei G eine Glycidylgruppe ist, R<sub>8</sub> ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.



allgemeine Formel (42)

wobei G eine Glycidylgruppe ist, R<sub>8</sub> ausgewählt ist aus Phenylgruppen, Alkylgruppen mit 1–12 Kohlenstoffatomen, Aminogruppen, Hydroxylgruppen, Hydroxylalkylgruppen, Ethergruppen, Estergruppen, Carboxylgruppen, ungesättigten Kohlenwasserstoffgruppen, Thiolgruppen, und Nitrilgruppen, wobei "n" 0.0–10, vorzugsweise 0.0–3.0, insbesondere bevorzugt 0.0–1.0 beträgt, und "m" 1.0–10, vorzugsweise 1.0–5.0, insbesondere bevorzugt 1.0–2.0 beträgt.

[0136] Das das Epoxidharz enthaltende flammhemmende Harzmaterial kann als flammhemmendes Mittel in der Harzzusammensetzung oder im Basismaterial der Epoxidharzzusammensetzung in Kombination mit weiteren Phenolharzen oder Aminoverbindungen verwendet werden. Die zum Mischen zur Verfügung stehenden Epoxidharze unterliegen an sich keinen Beschränkungen, können jedoch beispielsweise Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharze, Phenolphenylenaralkyl-Epoxidharze, Phenoldiphenyletheraralkylharze, naphthalinhalige Epoxidharze, wie Naphthalaralkyl-Epoxidharze, Phenoltriazinharze, Phenolanthracenaralkyl-Epoxidharze, Bisphenolfluoren-Epoxidharze, Phenoltriazin-Epoxidharze, zumindest eines oder eine Kombination von Biphenyl-4,4'-Diglycidylether, und 3,3',5,5'-Tetramethylbiphenyl-4,4'-diglycidylether, Tetraphenylether-Epoxidharze, Trisphenylether-Epoxidharze, Phenolnovolak-Epoxidharze, Kresolnovolak-Epoxidharze, Bis-Phenol A Epoxidharze, Bis-Phenol F Epoxidharze, Bis-Phenol S Epoxidharze, Polyphenol-Epoxidharze, aliphatische Ester von Epoxidharzen, zyklische aliphatische Ester von Epoxidharzen, sowie Ether-Ester-Epoxidharze sein.

Die für eine Kombination zur Verfügung stehenden Aminverbindungen unterliegen an sich keinen Beschränkungen und können beispielsweise Glycidylaminverbindungen sein, wie Diaminodiphenylmethan, Diethylentriamin, und Diaminodiphenylsulfon. Diese Epoxidharze können alleine oder auch in Kombination verwendet werden. Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharze, Phenolphenylenaralkyl-Epoxidharze, Phenolphenylenaralkyl-Epoxidharze, Phenoldiphenyletheraralkyl-Epoxidharze, sowie Naphtholaralkyl-Epoxidharze sind insbesondere bevorzugt.

[0137] Das gewichtsgemittelte Molekulargewicht des im erfindungsgemäßen flammhemmenden Phenolharzmaterial enthaltenen Phenolkondensats unterliegt an sich keinen Beschränkungen, kann jedoch beispielsweise 300–10000 betragen. Das gewichtsgemittelte Molekulargewicht des im erfindungsgemäßen Epoxidharzmaterial enthaltenen Epoxidharzes unterliegt an sich keinen Beschränkungen, kann jedoch beispielsweise 300–10000 betragen.

[0138] Vorzugsweise ist das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial im Wesentlichen frei von nicht abreagiertem Formaldehyd und Methyloxygruppen, um die Mischstabilität mit dem Epoxidharz oder dem als Basismaterial verwendeten wärmehärtbaren Agens oder dem wärmehärtbaren Agens zu verbessern.

[0139] Der Anteil an nicht abreagierten unifunktionalen Phenolmonomeren im flammhemmenden Harzmaterial der Erfindung beträgt vorzugsweise nicht mehr als 3 Gewichtsprozent, um die Mischstabilität und insbesondere die thermische Stabilität und die Stabilität des Epoxidharzzusammensetzung gegenüber Feuchtigkeit zu verbessern.

[0140] Unter einem nicht abreagierten unifunktionalen Phenolmonomer wird ein Phenolmonomer verstanden, welches nur eine phenolische Hydroxylgruppe enthält, welche mit Epoxidgruppen umgesetzt werden kann.

[0141] Die erfindungsgemäße flammhemmende Harzzusammensetzung umfasst das flammhemmende Phenolharzmaterial und/oder das flammhemmende Epoxidharzmaterial. Es ist möglich, diese Harzmaterialen alleine oder auch in Kombination zuzugeben. Es können auch Mischungen des flammhemmenden Phenolharzmaterials und des flammhemmenden Epoxidharzmaterials hergestellt werden, um diese zur Mischung zuzugeben. Es ist auch möglich, eine Mischung des flammhemmenden Phenolharzmaterials und des flammhemmenden Epoxidharzmaterials herzustellen, um anschließend die Mischung teilweise oder vollständig thermisch auszuhärten und diese dann zu vermahlen, um sie als Pulver zugeben zu können.

[0142] Erfindungsgemäß liegt der Gesamtanteil (X) des Phenolkondensats und des Epoxidharzes, welches durch Glycidyl-Veretherung des Phenolkondensates erhalten wurde, im Bereich von 0.1 Gewichtsprozent bis 45 Gewichtsprozent, insbesondere bevorzugt 0.3 Gewichtsprozent bis 30 Gewichtsprozent, wobei  $X = (b/a) \cdot 100$ , "a" dem Gesamtgewicht der Harzkomponente der Harzzusammensetzung entspricht, "b" dem Gesamtgewicht des Phenolkondensats und des Epoxidharzes entspricht, welches durch Glycidyl-Veretherung des Phenolkondensats erhalten wurde.

[0143] Beträgt das Gesamtgewicht weniger als 0.1 Gewichtsprozent, ist die Menge des auf Stickstoff beruhenden flammhemmenden Gases nicht ausreichend, um das Feuer oder die Flammen zurückzudrängen. Beträgt das Gesamtgewicht weniger als 45 Gewichtsprozent, ist es möglich, dass die zur Verfügung stehende flammhemmende Wirkung nicht ausreichend ist, und es ist außerdem möglich, dass die Konzentration der heterocyclischen Verbindung, welche Stickstoff als Heteroatom enthält, in der Harzzusammensetzung so hoch ist, dass sich die Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit vermindert.

[0144] In der erfindungsgemäßen flammhemmenden Harzzusammensetzung kann das Epoxidharz und das wärmehärtende Agens für das Epoxidharz enthalten sein. Ein Verhältnis (OH/Ep) der Gesamtzahl an Epoxidgruppen (Ep) im Epoxidharz zur Gesamtzahl (OH) der Hydroxylgruppen im wärmehärtbaren Agens liegt vorzugsweise im Bereich von 0.7 bis 2.5, um die flammhemmende Wirkung des Harzes zu verbessern. Beträgt das Verhältnis (OH/Ep) weniger als 0.7, erhöht sich die Menge an freigesetzter entflammbarer Komponente, wie Allylalkohol, wegen des restlichen Epoxidharzes, welches in einer Brückenstruktur angeordnet ist, welche durch das wärmehärtende Agens und das Epoxidharz ausgebildet wurde, wodurch eine Verbesserung der flammhemmenden Wirkung unterdrückt wird. Beträgt das Verhältnis (OH/Ep) mehr als 2.5, ist die Dichte, der Verbrückungen zu gering, um die Epoxidharzzusammensetzung auszuhärten, wodurch die thermische Stabilität und die Festigkeit unzureichend sind.

[0145] Die erfindungsgemäße flammhemmende Harzzusammensetzung kann gegebenenfalls verschiedene Additive enthalten, wie Füllmittel und Promotoren zum Aushärten.

[0146] Die zur Verfügung stehenden Füllstoffe unterliegen keinen Beschränkungen und können beispielsweise amorphes Silicapulver, kristallines Silicapulver, Aluminiumoxidpulver, Siliziumnitrid, Glasfasern, Kohlefasern, und Aramidfasern oder aromatische Polyamidfasern sein. Die Füllstoffe können alleine oder als Mischung verwendet werden.

[0147] Als Aushärtungspromotoren können Promotoren zum Aushärten des Epoxidharzes und des Härungsagens verwendet werden, beispielsweise Triphenylphosphin, 2-Methylimidazol, sowie 1,8-Diazabicyclo(5,4,0)undecin-7. Solche Härungspromotoren können alleine oder als Mischung verwendet werden.

[0148] Weitere mögliche Additive sind beispielsweise färbende Materialien, wie Ruß, siliziumhaltige Koppungsagentien wie  $\gamma$ -Glycidoxipropyltrimethoxysilan, Gleitmittel, wie Siliconöle und Silicongummi, natürliche

Wachse, synthetische Wachse, höhere Fettsäuren, sowie deren Metallsalze, und Entformungsmittel, wie Paraffin. Ferner können weitere flammhemmende Mittel verwendet werden, welche ausgewählt sind aus der Gruppe von Phosphorverbindungen, wie roter Phosphor und Phosphorsäureester, Metallhydroxiden, wie von Magnesium, Aluminium, Zink, Bor, Calcium, Nickel, Cobalt, Zinn, Kupfer, Eisen und Titan.

[0149] Die Metalloxide können zusätzlich verwendet werden, wobei vorausgesetzt wird, dass sich die flammhemmende Wirkung durch die gemeinsame Verwendung des Metalloxides und des Harzmaterials verbessert. Ein zusammengesetztes Metallhydroxid aus dem Metallhydroxid und dem Metalloxid kann zur Verbesserung der flammhemmenden Wirkung verwendet werden. Die erforderliche Menge der zuzugebenden flammhemmenden Mittel ist gering, da das flammhemmende Mittel das flammhemmende Phenolharzmaterial und/oder das flammhemmende Epoxidharzmaterial umfasst, wodurch eine Verschlechterung der Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit und andere Eigenschaften unterdrückt werden können.

[0150] Die das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial enthaltende wärmehärtbare Harzzusammensetzung kann hergestellt werden, indem zunächst in einem Bandmischer oder einem Henschelmischer gemischt wird und anschließend unter Verwendung heizbarer Rollen oder Knetwerke bzw. durch Auflösen in einem organischen Lösungsmittel weiter vermischt wird. Nachdem das organische Lösungsmittel und gegebenenfalls Feuchtigkeit entfernt wurden, wird unter bestimmten Bedingungen mit einer Spritzpresse oder einer heizbaren Presse weiterverarbeitet, wobei die Harzzusammensetzung erhitzt wird, um eine Verbrückung zu bewirken, durch welche die Harzzusammensetzung ausgehärtet wird, wodurch eine ausgehärtete Harzzusammensetzung mit einer hohen flammhemmenden Wirkung erhalten wird.

[0151] Halbleitervorrichtungen, in welchen als isolierendes Material eine Epoxidharzzusammensetzung verwendet wird, welche das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial umfasst, zeigen eine ausgezeichnete flammhemmende Wirkung, thermische Stabilität bzw. Beständigkeit gegenüber thermischer Zersetzung, sowie eine hohe Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit. Beispielsweise kann eine Halbleitervorrichtung auf einem entsprechenden Steckplatz einer Leiterbahn für den Anschluss von elektrischen Verbindungen montiert werden und die Halbleitervorrichtung anschließend mit einer Harzzusammensetzung isoliert werden, welche das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial enthält. Die oben beschriebene Epoxidharzzusammensetzung kann auf einer Leiterbahn auf einer Halbleitervorrichtung aufgebracht werden. Die oben beschriebene Epoxidharzzusammensetzung kann auch zum Versiegeln verschiedener Arten elektrischer und elektronischer Vorrichtungen verwendet werden, welche Halbleitervorrichtungen umfassen.

[0152] Die oben beschriebene Epoxidharzzusammensetzung, welche das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial umfasst, kann als Isolator auf einer gedruckten Leiterplatte verwendet werden und Glasfasern enthalten, um die flammhemmende Wirkung zu verbessern, sowie die thermische Stabilität oder die Beständigkeit gegenüber thermischer Zersetzung sowie die Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit. Die oben beschriebene Epoxidharzzusammensetzung, welche das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial enthält, kann weiter als formbares Material, als spritzbares Material, als Klebstoff, als farbiges Material verwendet werden, um die flammhemmende Wirkung, die thermische Stabilität beziehungsweise die Beständigkeit gegenüber thermischer Zersetzung, sowie die Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit zu verbessern.

[0153] Die oben beschriebene thermoplastische Harzzusammensetzung, welche das erfindungsgemäße flammhemmende Harzmaterial umfasst, kann durch Extruder verarbeitet werden, wie Einschneckenextruder, Zweischneckenextruder, oder weitere Arten von Extrudern. Vor dem Eingeben in eine Spritzgussvorrichtung oder eine Heipresse kann gegebenenfalls Feuchtigkeit entfernt werden, um anschließend unter bestimmten Bedingungen die thermoplastische Harzzusammensetzung, welche eine hohe flammhemmende Wirkung aufweist, zu formen.

[0154] Im Weiteren wird die vorliegende Erfindung anhand von Beispielen und Vergleichsbeispielen beschrieben, wobei ein Füllmittel verwendet wird, welches geschmolzene sphärische Silicapartikel umfasst, welche einen Bemittelten Teilchendurchmesser von 16 Mikrometern und eine spezifische Oberfläche von 1.9 m<sup>2</sup>/g, bestimmt durch die BET-Methode, aufweisen, wobei der Anteil von Partikeln mit einem Durchmesser von nicht weniger als 75 Mikrometern 0.5 Gewichtsprozent beträgt.

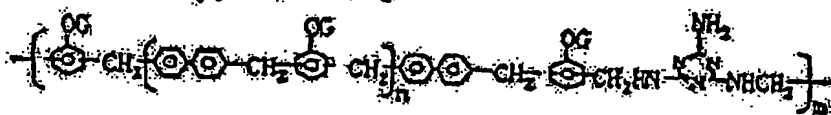
[0155] Es wird ein siliziumhaltiges Kopplungsagent verwendet, welches N-Phenyl-γ-Aminopropyltrimethoxysilan (KBM573) enthält und welches kommerziell von Shin-Etsu Chemical Industries Co. bezogen werden kann.

#### BEISPIEL 1:

[0156] Ein Kolben wurde mit einem Thermometer, einem Tropftrichter, einem Kühler und einer Kolonne zur fraktionierten Destillation sowie einem Rührer versehen. 99 Gewichtsteile (1.05 Mol) des Phenols sowie 121 Gewichtsteile (0.5 Mol) einer durch die folgende allgemeine Formel (43) wiedergegebenen Verbindung wurden in den Kolben gegeben. Unter Einblasen von Stickstoff wurde bei Raumtemperatur gerührt. Es wurden 0.5 Gewichtsteile (0.0026 Mol) p-Toluolsulfonsäure (1-Hydrat) portionsweise in den Kolben gegeben, wobei die Wärmeentwicklung beobachtet wurde und darauf geachtet wurde, dass die Temperatur der Lösung nicht über 50°C



(PE1)

allgemeine Formel (47)

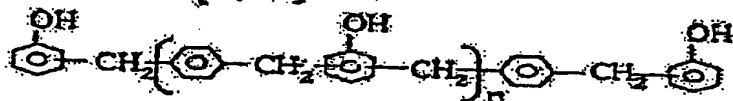
wobei "n" zwischen 0.0 und 1.0 und "m" zwischen 1.0 und 2.0 gewählt ist.

## BEISPIEL 4:

[0160] Ein Kolben wurde mit einem Thermometer, einem Tropftrichter, einem Kühler, einer Fraktionierkolonne sowie einem Rührer versehen. In den Kolben wurden 99 Gewichtsteile (1.05 Mol) Phenol und 83 Gewichtsteile (0.5 Mol) einer durch die folgende allgemeine Formel (47) wiedergegebene Verbindung gegeben. Unter Einblasen von Stickstoff wurde bei Raumtemperatur gerührt. Es wurden 0.5 Gewichtsteile (0.0026 Mol) p-Toloulsulfonsäure (1-Hydrat) portionsweise in den Kolben gegeben, wobei auf die Wärmeentwicklung geachtet wurde, so dass die Temperatur der Lösung nicht über 50°C stieg. Anschließend wurde die Temperatur mittels eines Ölbad auf 120°C erhöht, so dass mit Hilfe der Fraktionierkolonne Methanol abgetrennt wurde, ehe anschließend für 5 Stunden umgesetzt wurde. Nach der Reaktion wurden 500 ml Methylisobutyketon zugegeben und dann die organische Schicht zur Reinigung mit Wasser in einen Scheidetrichter überführt und so lange gewaschen, bis die Waschlösung neutral war. Das Lösungsmittel und nicht abreagiertes einwertiges Phenol wurden durch Erhitzen bei vermindertem Druck aus der organischen Schicht entfernt, wodurch ein Kondensat (F) der folgenden allgemeinen Formel (48) erhalten wurde.

allgemeine Formel (47)

(F)

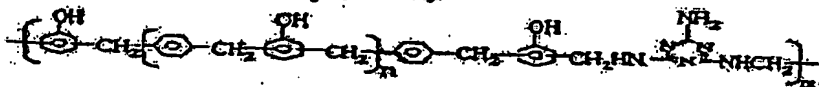
allgemeine Formel (48)

wobei "n" zwischen 0.0 und 1.0 gewählt ist.

## BEISPIEL 5:

[0161] Zu 63.8 Gewichtsteilen (0.22 Mol) des in Beispiel 4 erhaltenen Kondensates (F) wurden 26.4 Gewichtsteile (0.22 Mol) Melamin, 8.1 Gewichtsteile (0.11 Mol) einer 41.5 gewichtsprozentigen Lösung von Formaldehyd und 0.2 Gewichtsteile (0.01 Mol) einer 25 gewichtsprozentigen Ammoniaklösung gegeben und die Temperatur schrittweise auf 100°C erhöht, wobei auf Wärmenentwicklung geachtet wurde. Die Reaktion wurde während 5 Stunden bei 100°C durchgeführt und die Temperatur anschließend für 2 Stunden bei Atmosphärendruck auf 180°C erhöht, um das Wasser zu entfernen. Anschließend wurden nicht abreagierte Substanzen bei vermindertem Druck entfernt, um ein Phenolkondensat (P2) mit einem Stickstoffgehalt von 8 Gewichtsprozent und einer Anzahl von Hydroxylgruppenequivalenten von 245 sowie mit einem Erweichungspunkt von 92°C zu erhalten. Das erhaltene Phenolkondensat von (P2) ist durch die folgende allgemeine Formel (49) wiedergegeben.

(P2)

allgemeine Formel (49)

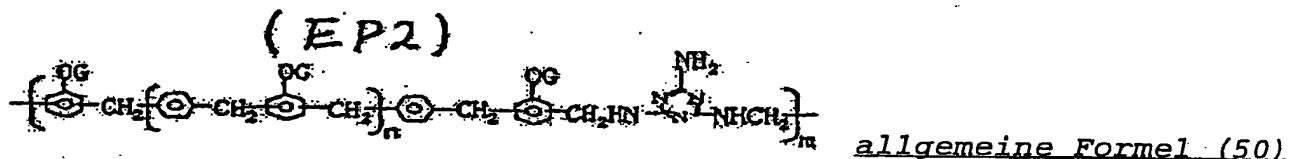
wobei "n" zwischen 0.0 und 1.0, sowie "m" zwischen 1.0 und 2.0 gewählt ist.

## BEISPIEL 6:

[0162] 25 Gewichtsteile (0.05 Mol) des in Beispiel 5 enthaltenen Phenolkondensates (P2) wurden zu 50 Gewichtsteilen (0.54 Mol) Epichlorhydrin gegeben und zum Lösen die Temperatur auf 105°C erhöht. Weiter wur-

den während 3 Stunden 20 Gewichtsteile (0.1 Mol) einer Lösung von 20 Gewichtsprozent Natriumhydroxid zugegeben und die Lösung während 30 Minuten in Ruhe belassen, um eine Trennung der Phasen zu bewirken, um anschließend die untere wässrige Phase zu entfernen.

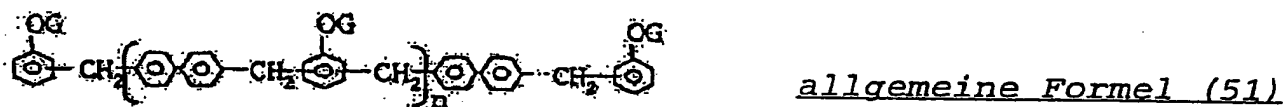
[0163] Anschließend wurde überschüssiges Epichlorhydrin abdestilliert und einer erneuten Verwendung zugeführt. Es wurden 20 Gewichtsteile (1.2 Mol) Methylisobutylketon zugegeben und gelöst. Es wurden 0.5 Gewichtsteile (0.0025 Mol) einer Lösung von 20 Gewichtsprozent Natriumhydroxid zugegeben und die Lösung bei 70°C für 3 Stunden in Ruhe belassen, um eine Phasentrennung zu bewirken, ehe die unten angeordnete Wasserschicht abgetrennt wurde. Die verbleibende Phase wurde mit 200 Gewichtsteilen destilliertem Wasser gereinigt. Flüchtige Anteile wurden durch Destillation entfernt, um ein Epoxidharz (EP2) mit einem Stickstoffgehalt von 6 Gewichtsprozent und einem Anteil an Epoxidequivalenten von 270 sowie einem Erweichungspunkt von 96°C zu erhalten, welches hydrolytisch abspaltbares Chlor in einem Anteil von nicht mehr als 400 ppm enthielt. Das erhaltene Epoxidharz (EP2) wird durch die folgende allgemeine Formel (50) wiedergegeben.



wobei G für eine Glycidylgruppe steht, "n" zwischen 0.0 und 1.0 und "m" zwischen 1.0 und 2.0 gewählt ist.

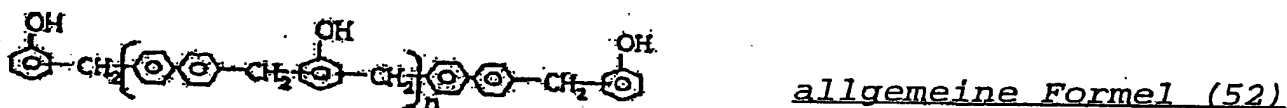
[0164] Die in den folgenden Beispielen und Vergleichsbeispielen verwendeten Epoxidharze und wärmehärtbaren Agentien sind durch die folgenden allgemeinen Formel (51) bis (60) wiedergegeben und die in den folgenden Beispielen und Vergleichsbeispielen verwendeten thermoplastischen Harzen sind dargestellt.

(Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1))



wobei "G" für eine Glycidylgruppe steht, "n" zwischen 0.0 und 10 gewählt ist, der Erweichungspunkt 57°C beträgt und die Anzahl der Epoxidequivalente 270.

(Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1))



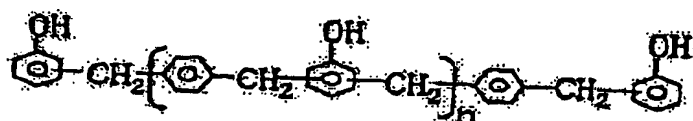
wobei "n" zwischen 0.0 und 10 gewählt ist, der Erweichungspunkt 120°C beträgt und die Anzahl der Hydroxylgruppenequivalente 208 beträgt.

(Phenolphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 2))



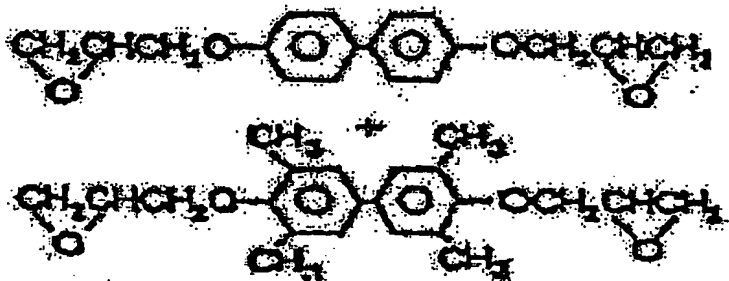
wobei "G" für eine Glycidylgruppe steht, "n" zwischen 0.0 und 10 gewählt ist, der Erweichungspunkt 55°C beträgt und die Anzahl der Epoxidequivalente 238 beträgt.

(Phenolphenylenaralkylharz (Phenolharz 2))

allgemeine Formel (54)

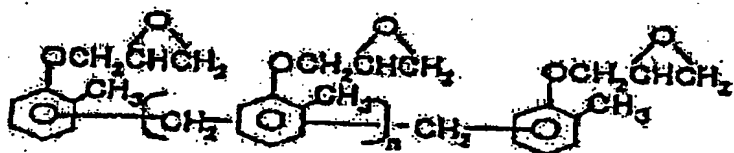
wobei "n" zwischen 0.0 und 10 gewählt ist, der Erweichungspunkt 83°C beträgt, und die Anzahl der Hydroxylgruppenequivalente 175.

(2-wertiges Biphenyl-Epoxidharz (Epoxidharz 3))

allgemeine Formel (55)

wobei der Schmelzpunkt 111°C ist und die Anzahl der Epoxidequivalente 170 beträgt.

(Kresolnovolak-Epoxidharz (Epoxidharz 4))

allgemeine Formel (56)

wobei "n" zwischen 0.0 und 10 gewählt ist, der Erweichungspunkt 68°C beträgt und die Anzahl der Epoxidequivalente 194.

(Phenoltriazin-Epoxidharz)

allgemeine Formel (57)

wobei "G" eine Glycidylgruppe steht, "n" zwischen 0.0 und 10, sowie "m" zwischen 1.0 und 10 gewählt ist, der Erweichungspunkt 65°C, die Anzahl der Epoxidequivalente 220 und der Stickstoffgehalt 6 Gewichtsprozent beträgt.

(Phenoltriazinharz)

allgemeine Formel (58)

wobei "n" zwischen 0.0 und 10, "m" zwischen 1.0 und 10 gewählt ist, der Erweichungspunkt 90°C beträgt, die Zahl der Hydroxylgruppenequivalente 124, und der Stickstoffgehalt 8 Gewichtsprozent beträgt.

(Phenolbenzoguanaminharz)

allgemeine Formel (59)

wobei "n" zwischen 0.0 und 10, "m" zwischen 1.0 und 10 gewählt ist, der Erweichungspunkt 105°C beträgt, die Zahl der Hydroxylgruppenäquivalente 220 und der Stickstoffgehalt 19 Gewichtsprozent beträgt.

(Phenolbenzoguanamin-Epoxidharz)

allgemeine Formel (60)

wobei "G" für eine Glycidylgruppe steht, "n" zwischen 0.0 und 10, "m" zwischen 1.0 und 10 gewählt ist, der Erweichungspunkt 80 °C, die Zahl der Epoxidequivalente 276 und der Stickstoffgehalt 15 Gewichtsprozent beträgt.

(thermoplastische Harzzusammensetzung 1)

[0165] Acrylnitrilbutadienstyrolcopolymer: Sumitomo Chemical A & L GA 704, im Weiteren als "ABS" bezeichnet.

(thermoplastische Harzzusammensetzung 2)

[0166] Polystyrolharz: Shin-Nitetsu Sumitomo Chemical H-65, im Weiteren als "PS" bezeichnet.

## BEISPIEL 7:

[0167] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 11.2 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 7.5 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 1.4 Gewichtsprozent des in Beispiel 2 erhaltenen Phenolkondensates (P1), 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin.

[0168] (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung anschließend abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu bilden.

[0169] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zu Flammhemmung verarbeitet. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte zur Prüfung der flammhemmenden Wirkung zu erhalten.

## BEISPIEL 8:

[0170] Zunächst wurden bei Raumtemperatur 10.0 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 8.7 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 1.4 Gewichtsprozent des in Beispiel 3 erhaltenen Epoxidharzes (EP1), 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsteile Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Die Mischung wurde anschließend während 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung anschließend abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0171] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Form-

zeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zu Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet um eine Testplatte zur Prüfung der flammhemmenden Wirkung zu erhalten.

#### BEISPIEL 9:

[0172] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 5.99 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 4.94 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 1.17 Gewichtsprozent des in Beispiel 2 erhaltenen Phenolharzes (P1), 88.4 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.2 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.1 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.1 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0173] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur flammhemmenden Wirkung geformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Testplatte zur Prüfung der flammhemmenden Wirkung zu erhalten.

#### BEISPIEL 10:

[0174] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 11.2 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 7.5 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 1.4 Gewichtsprozent des Phenolkondensats (P2), 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Die Mischung wurde anschließend während 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung anschließend abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0175] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur flammhemmenden Wirkung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Testplatte zur Prüfung der flammhemmenden Wirkung zu erhalten.

#### BEISPIEL 11:

[0176] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 10.0 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 8.7 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 1.4 Gewichtsprozent des Epoxidharzes (EP2), 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Die Mischung wurde anschließend für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0177] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur flammhemmenden Wirkung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Testplatte zur Prüfung der flammhemmenden Wirkung zu erhalten.

#### BEISPIEL 12:

[0178] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 11.4 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 2), 7.3 Gewichtsteile Phenolphenylaralkylharz (Phenolharz 2), 1.4 Gewichtsprozent des oben erhaltenen Phenolkondensates (P2), 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Die Mischung wurde anschließend während 5 Minuten bei 100°C gerollt und dann die Mischung abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0179] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Form-

zeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur flammhemmenden Wirkung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Testplatte zur Prüfung der flammhemmenden Wirkung zu erhalten.

#### BEISPIEL 13:

[0180] Bei einer Temperatur von 220°C wurde in einem Extruder 10.0 Gewichtsprozent des oben beschriebenen Phenolkondensates (P1), 89.5 Gewichtsprozent ABS (thermoplastisches Harz 1), 0.5 Gewichtsprozent Polytetrafluorethylen (PTFE) geschmolzen und vermischt, um eine Harzzusammensetzung auszubilden. Diese Harzzusammensetzung wurde für 3 Stunden bei 120°C getrocknet und anschließend während 1 Minute bei 200°C unter Druck zu einer flachen Platte geformt, welche eine Dicke von 3.2 Millimetern aufwies.

#### BEISPIEL 14:

[0181] Mit einem Extruder wurden bei einer Temperatur von 220 °C 10.0 Gewichtsprozent des Phenolkondensates (P1), 89.5 Gewichtsprozent PS (thermoplastisches Harz 2), 0.5 Gewichtsprozent Polytetrafluorethylen (PTFE) geschmolzen und vermischt, um eine Harzzusammensetzung herzustellen. Diese Harzzusammensetzung wurde während 3 Stunden bei 120°C getrocknet und anschließend bei 200°C während 1 Minute unter Druck zu einer flachen Platte geformt, die eine Dicke von 3.2 Millimetern aufwies.

[0182] Die in den Beispielen 7 bis 14 erhaltenen Testplatten wurden auf ihre flammhemmenden Eigenschaften, auf den Koeffizienten zur Absorption von kochendem Wasser, auf ihre thermische Stabilität und auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht.

#### Prüfung auf Flammhemmung:

[0183] Die Testplatten wiesen eine Größe mit einer Länge von 127 mm, einer Breite von 12.7 und einer Dicke von 1.6 beziehungsweise 3.2 mm auf. Die Platte wurde mittels eines Probenhalters (Klammer) in der Weise gehalten, dass die Platte in ihrer Längsrichtung vertikal angeordnet ist. An der der Klammer gegenüberliegenden Kante wurde die Platte mittels eines Brenners für 10 Sekunden einer Flamme ausgesetzt und der Brenner von der Platte entfernt, um die Zeit zu messen, während der die Flamme auf der Platte verbleibt, nachdem der Brenner von der Platte entfernt worden war (erste Nachbrennzeit = F1). Nach Erlöschen der Flamme wurde die Platte erneut für 10 Sekunden der Flamme eines Brenners ausgesetzt und der Brenner anschließend von der Platte entfernt, um so die Nachbrennzeit zu bestimmen (zweite Nachbrennzeit = F2). Diese Prüfung wurde mit fünf Proben jedes Plattentypes durchgeführt, um auf diese Weise die flammhemmenden Eigenschaften zu bestimmen. Es wurden dabei 4 Kriterien zur Beurteilung der flammhemmenden Wirkung herangezogen.

#### Höchstes Kriterium (UL94 V-0)

[0184]  $\Sigma F \leq 50$  Sekunden ( $\Sigma F$  = Gesamtzeit der individuellen Nachbrennzeiten von 5 Platten)/ $F_{\max} \leq 10$  Sekunden ( $F_{\max}$  = längste Zeit der beiden Nachbrennzeiten F1 und F2./Kein Abtropfen (Abtropfen = Abtropfen eines geschmolzenen Teils der Platte durch die Einwirkung der Flamme)/Flamme erreicht die Klammer nicht.

#### Hohes Kriterium (UL94 V-1)

[0185]  $\Sigma F \leq 250$  Sekunden ( $\Sigma F$  = Gesamtzeit der individuellen Nachbrennzeiten von 5 Platten)/ $F_{\max} \leq 30$  Sekunden ( $F_{\max}$  = längste der zwei Nachbrennzeiten F1 und F2./Kein Abtropfen (Abtropfen = Abtropfen eines geschmolzenen Teils der Platte durch die Einwirkung der Flamme)/Flamme erreicht die Klammer nicht.

#### Niedriges Kriterium (UL94 V-2)

[0186]  $\Sigma F \leq 250$  Sekunden ( $\Sigma F$  = Gesamtzeit der individuellen Nachbrennzeiten von 5 Platten)/ $F_{\max} \leq 30$  Sekunden ( $F_{\max}$  = längste der zwei Nachbrennzeiten F1 und F2./Abtropfen (Abtropfen = Abtropfen eines geschmolzenen Teils der Platte durch die Einwirkung der Flamme)/Flamme erreicht die Klammer nicht.

#### Niedrigstes Kriterium (UL94 V-2)

[0187]  $\Sigma F > 250$  Sekunden ( $\Sigma F$  = Gesamtzeit der individuellen Nachbrennzeiten von 5 Platten)/ $F_{\max} > 30$  Sekunden ( $F_{\max}$  = längste der zwei Nachbrennzeiten F1 und F2./Abtropfen (Abtropfen = Abtropfen eines geschmolzenen Teils der Platte durch die Einwirkung der Flamme)/Flamme erreicht die Klammer.

Prüfung auf den Koeffizienten der Absorption von kochendem Wasser:

[0188] Die Harzzusammensetzung aus Beispiel 7 wurde zu einer Scheibe mit einem Durchmesser von 55 Millimetern und einer Dicke von 3 Millimetern geformt. Die scheibenförmige Harzzusammensetzung wurde für 24 Stunden bei 100°C in kochendes Wasser getaucht. Der Absorptionskoeffizient für kochendes Wasser (Gewichtsprozent) wurde in der Weise bestimmt, dass der Gewichtsunterschied der scheibenförmigen Harzzusammensetzung vor und nach dem Eintauchen in das kochende Wasser bestimmt wurde. Die Ergebnisse der Prüfung auf den Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser sind unten in Tabelle 1 aufgeführt.

Prüfung auf thermische Stabilität (Widerstandsfähigkeit gegen thermische Zersetzung):

[0189] Die in Beispiel 7 erhaltene Platte zur Prüfung der flammhemmenden Wirkung wurde gebrochen, um 10 g eines Pulvers mit einer Korngröße von 80 Mikrometern herzustellen. Das Pulver wurde bei einer Temperatursteigerungsrate von 200°C/min in Luft bei einer Strömungsrate von 200 ml/min erhitzt. War eine Erniedrigung um 5 Gewichtsprozent erreicht, wurde die Temperatur gemessen. Die Ergebnisse der Prüfung auf thermische Stabilität sind unten in Tabelle 1 aufgeführt.

Prüfung auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit

[0190] Es wurde ein Silikonchip mit einer Ausdehnung in Längsrichtung von 3.0 Millimetern, einer Ausdehnung von 3.5 Millimetern in horizontaler Richtung und einer Stärke von 3.5 Millimetern hergestellt, wobei Leiterbahnen aus Aluminium mit einer Breite von 10 Mikrometer und einem Abstand von 10 Mikrometern bereitgestellt wurden und die Aluminiumleiterbahnen als Anschlüsse zu Quadraten von 70 Mikrometern Kantenlänge erweitert waren. Dieser Chip wurde auf eine 16pin DIP42-aloy Rahmen montiert, so dass Goldanschlüsse mit einer Ausdehnung von 20 Mikrometern direkt mit den Anschlüssen des Chips verbunden wurden. Anschließend wurde der Chip mit Hilfe einer Einkolben-Spritzpresse mit der bei Beispiel 7 beschriebenen Tablette isoliert, wobei diese zunächst auf 85 °C erhitzt wurde, die Einspritzzeit 15 Sekunden betrug, der Einspritzdruck (wirksamer Druck) 100 kg/cm<sup>2</sup>, die Formtemperatur 175 °C, die Formzeit 120 Sekunden, wobei auf diese Weise eine Halbleitervorrichtung vom 16pin DIP Typ hergestellt wurde, welche eine Ausdehnung in Längsrichtung von 18 Millimetern, eine Breite von 5 Millimetern und eine Dicke von 3 Millimetern aufwies. Die Halbleitervorrichtung wurde anschließend während 4 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Probe für die Prüfung auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit zu erhalten.

[0191] Zehn der oben hergestellten Halbleitervorrichtungen wurden in einem Autoklaven-Test (PCBT) untersucht wobei eine Spannung von 20 V angelegt wurde. Erreicht die Defektrate 20% oder werden zwei Halbleitervorrichtungen defekt, wurde diese Zeit gemessen und als Index für die Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit verwendet. Eine lange Dauer bis zur Ausbildung von Defekten entspricht einer hohen Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit. Die Ergebnisse dieser Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 1 aufgeführt.

TABELLE 1

	Bsp. 7	Bsp. 8	Bsp. 9	Bsp. 10	Bsp. 11	Bsp. 12	Bsp. 13	Bsp. 14
Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1)	11.2	10.0	5.99	11.2	10	-	-	-
Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1)	7.5	8.7	4.94	7.5	8.7	-	-	-
Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 2)	-	-	-	-	-	11.4	-	-
Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 2)	-	-	-	-	-	7.3	-	-
2-wertiges Biphenyl-Epoxidharz (Epoxidharz 3)	-	-	-	-	-	-	-	-
Cresolnovolak-Epoxidharz (Epoxidharz 4)	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbiphenyltriazin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE1], N6 Gew.-%)	-	1.4(7.0/0.42)	-	-	-	-	-	-
Phenolbiphenyltriazinharz (Phenolkondensat [P1], N8 Gew.-%)	1.4(7.0/0.56)	-	0.17(1.5/0.12)	-	-	-	10.0(10.0/8)	10.0(10.0/8)
Phenolbiphenyltriazin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE2], N6 Gew.-%)	6	-	-	-	1.4(7.0/0.42)	-	-	-
Phenolbiphenyltriazinharz (Phenolkondensat [P2], N8 Gew.-%)	-	-	-	1.4(7.0/0.56)	-	1.4(7.0/0.42)	-	-
Phenolbiphenylbenzoguanamin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE3], N9 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbiphenylbenzoguanaminharz (Phenolkondensat [P3], N10 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbiphenylbenzoguanamin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE4], N8 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbiphenylbenzoguanaminharz (Phenolkondensat [P4], N10 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenoltriazin-Epoxidharz (N6 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenoltriazinharz (N8 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbenzoguanamin-Epoxidharz (N15 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbenzoguanaminharz (N19 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-
ABS (thermoplastisches Harz 1)	-	-	-	-	-	-	-	-
PS (thermoplastisches Harz 2)	-	-	-	-	-	-	-	-
amorphes sphärisches Silicapulver	-	-	-	-	-	-	89.5	89.5
Ruß	79.0	79.0	88.4	79.0	79.0	79.0	-	-
Silan-Kopplungsagens	0.4	0.4	0.2	0.4	0.4	0.4	-	-
Carnaubawachs	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	-	-
Triphenylphosphin (T.P.P)	0.2	0.2	0.1	0.2	0.2	0.2	-	-
Polytetrafluorethylen (PTFE)	0.2	0.2	0.1	0.2	0.2	0.2	-	-
UL94 Kriterium	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	0.5	0.5
Gesamtzeit der Nachbrennzeiten	7	9	20	15	16	19	V-1	V-1
Absorptionskoeffizient für kochendes Wasser für 24 Stunden	0.19	0.19	0.13	0.20	0.21	0.22	105	130
Widerstandsfähigkeit gegen thermische Zersetzung (Temperatur bei Ermeidung um 5 Gew.-%)	610	604	725	600	595	580	ungeprüft	ungeprüft
Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit (Zeit bei einer Defektrate von 20 %)	450	450	470	440	440	430	ungeprüft	ungeprüft
Zeit								

(A/B): A = Gewichtsprozent des Harzes bezogen auf die gesamte Harzmenge  
 B = Gewichtsprozent Stickstoffatome bezogen auf die gesamte Harzmenge  
 \* : Epoxidharz und Phenolharz dieser Erfindung

## VERGLEICHBSBEISPIEL 1:

[0192] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 11.9 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxid-

harz 1), 6.8 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 1.4 Gewichtsprozent Phenoltriazinharz mit einem Stickstoffanteil von 8 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung herzustellen.

[0193] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur flammhemmenden Wirkung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Testplatte zur Prüfung der flammhemmenden Eigenschaften zu erhalten.

[0194] Die in diesem Vergleichsbeispiel hergestellten Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf den Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf die thermische Stabilität und auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 2 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 2:

[0195] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 9.8 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 8.9 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 1.4 Gewichtsprozent Phenoltriazin-Epoxidharz mit einem Stickstoffanteil von 6 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung anschließend abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0196] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0197] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf den Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf die thermische Stabilität und auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse dieser Tests auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 2 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 3:

[0198] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 6.07 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 4.86 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 0.17 Gewichtsprozent Phenoltriazin-Epoxidharz mit einem Stickstoffanteil von 8 Gewichtsprozent, 88.4 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.2 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.1 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.1 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung anschließend abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0199] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese, Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf flammhemmende Wirkung zu erhalten.

[0200] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen geformten Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf den Absorptionskoeffizienten gegenüber kochendem Wasser, auf die thermische Stabilität und auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse dieser Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 2 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 4:

[0201] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 6.0 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxid-

harz 1), 5.1 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 88.4 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.2 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.1 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.1 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100 °C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0202] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf flammhemmende Wirkung zu erhalten.

[0203] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen geformten Testplatten wurde auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Koeffizienten zur Absorption von kochendem Wasser, auf die thermische Stabilität und auf ihre Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse dieser Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 2 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 5:

[0204] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 11.9 Gewichtsteile Phenolphenylenaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 2), 6.8 Gewichtsteile Phenolphenylenaralkylharz (Phenolharz 2), 1.4 Gewichtsprozent Phenoltriazinharz mit einem Stickstoffgehalt von 8 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.1 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.1 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0205] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf flammhemmende Wirkung zu erhalten.

[0206] Die in diesem Vergleichsbeispiel hergestellten Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Koeffizienten zur Absorption von kochendem Wasser, auf die thermische Stabilität und auf ihre Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse dieser Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 2 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 6:

[0207] Bei einer Temperatur von 220°C wurden in einem Extruder 99.5 Gewichtsprozent ABS (thermoplastisches Harz 1), 0.5 Gewichtsprozent Polytetrafluorethylen (PTFE) geschmolzen und vermischt, um eine Harzzusammensetzung zu erhalten. Diese Harzzusammensetzung wurde während 3 Stunden bei 120°C getrocknet und anschließend bei 200°C während 1 Minute durch Spritzgießen zu einer flachen Platte mit einer Dicke von 3.2 Millimeter geformt.

[0208] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen geformten Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Koeffizienten zur Absorption von kochendem Wasser, auf ihre thermische Stabilität und ihre Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Prüfung auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 2 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 7:

[0209] Bei einer Temperatur von 220°C wurden in einem Extruder 10.0 Gewichtsprozent Phenoltriazinharz mit einem Stickstoffanteil von 8 Gewichtsprozent, 89.5 Gewichtsprozent des oben beschriebenen ABS (thermoplastisches Harz 1), 0.5 Gewichtsprozent Polytetrafluorethylen (PTFE) geschmolzen und vermischt, um eine Harzzusammensetzung zu erhalten. Diese Harzzusammensetzung wurde für 3 Stunden bei 120°C getrocknet und anschließend bei 200°C während 1 Minute durch Spritzgießen zu einer flachen Platte geformt, welche eine Dicke von 3.2 Millimetern aufwies.

[0210] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen geformten Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Koeffizienten zur Absorption von kochendem Wasser, auf ihre thermische Stabilität und ihre Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 2 aufgeführt.

VERGLEICHBSBEISPIEL 8:

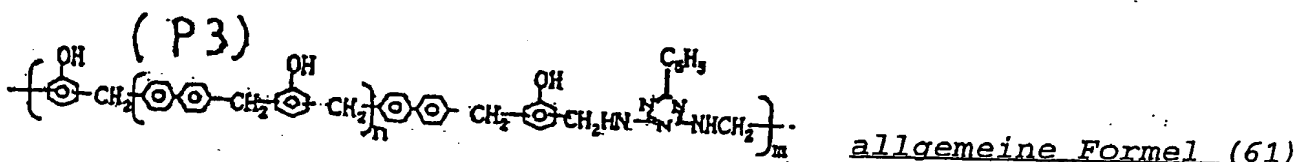
[0211] Bei einer Temperatur von 220°C wurden in einem Extruder 99.5 Gewichtsprozent PS (thermoplastisches Harz 2), 0.5 Gewichtsprozent Polytetrafluorethylen (PTFE) geschmolzen und vermischt, um eine Harzzusammensetzung zu erhalten. Diese Harzzusammensetzung wurde während 3 Stunden bei 120°C getrocknet und anschließend bei 200°C während 1 Minute durch Spritzgießen zu einer flachen Platte mit einer Dicke von 3.2 Millimeter geformt.

[0212] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen geformten Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Koeffizienten zur Absorption von kochendem Wasser, auf ihre thermische Stabilität und ihre Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Prüfung auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 2 aufgeführt.

(A/B): A = Gewichtsprozent des Harzes bezogen auf die gesamte Harzmenge  
 B = Gewichtsprozent der Stickstoffatome bezogen auf die gesamte Harzmenge  
 \* Epoxidharz und Phenolharz dieser Erfindung

[0213] 274.7 Gewichtsteile (0.5 Mol) des in Beispiel 1 erhaltenen Kondensats (E) wurden zu 93.85 Gewichtsteilen (0.5 Mol) Benzoguanamin, 52.7 Gewichtsteilen (0.65 Mol) einer Lösung von 37 Gewichtsprozent Form-

aldehyd sowie 0.879 Gewichtsteilen (0.015 Mol) einer Lösung von 29 Gewichtsprozent Ammoniak gegeben und die Temperatur langsam auf 100°C erhöht, wobei die Wärmeentwicklung beobachtet wurde. Die Reaktion wurde während 5 Stunden bei 100 °C fortgeführt und die Temperatur anschließend für 2 Stunden unter Atmosphärendruck auf 180°C erhöht, um das Wasser zu entfernen. Anschließend wurden nicht abreagierte Verbindungen unter niedrigem Druck entfernt, um ein Phenolkondensat (P3) zu erhalten, welches einen Stickstoffgehalt von 10 Gewichtsprozent und ein Hydroxylgruppenequivalent von 260 sowie einen Erweichungspunkt von 120°C aufwies. Das erhaltene Phenolkondensat (P3) wird durch die folgende allgemeine Formel (61) wiedergegeben.

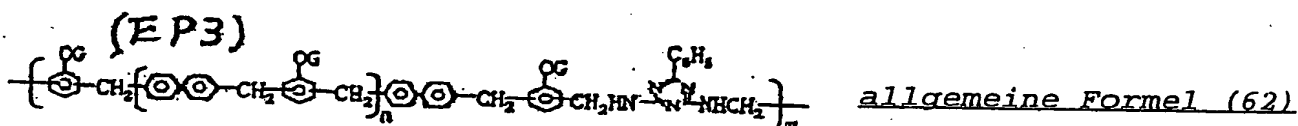


wobei "n" zwischen 0.0 und 1.0, sowie "m" zwischen 1.0 und 2.0 gewählt ist.

#### BEISPIEL 16:

[0214] 25 Gewichtsteile (0.05 Mol) des in Beispiel 15 erhaltenen Phenolkondensats (P3) wurden zu 50 Gewichtsteilen (0.54 Mol) Epichlorhydrin gegeben und die Temperatur zum Lösen auf 115°C erhöht. Ferner wurden 20 Gewichtsteile (0.1 Mol) einer Lösung von 20 Gewichtsprozent Natriumhydroxid während 3 Stunden zugegeben und die Lösung für 30 Minuten in Ruhe belassen, um eine Phasentrennung zu bewirken, ehe die unten angeordnete Wasserschicht entfernt wurde.

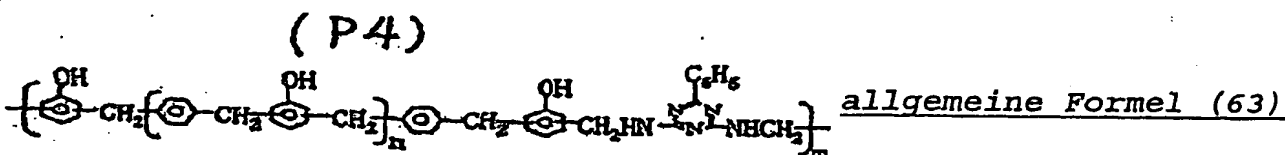
[0215] Anschließend wurde überschüssiges Epichlorhydrin abdestilliert und einer erneuten Verwendung zugeführt. Es wurden 20 Gewichtsteile (2 Mol) Methylisobutylketon zugegeben und gelöst. Es wurden 0.5 Gewichtsteile (0.0025 Mol) einer Lösung von 20 Gewichtsprozent Natriumhydroxid zugegeben und die Lösung für 3 Stunden bei 70°C in Ruhe belassen, um eine Phasentrennung zu bewirken, ehe die unten angeordnete Wasserschicht entfernt wurde. Der Rückstand wurde mit 200 Gewichtsteilen destilliertem Wasser gereinigt. Die flüchtigen Anteile wurden durch Destillation entfernt, um ein Epoxidharz (EP3) zu erhalten, welches einen Stickstoffgehalt von 9 Gewichtsprozent und eine Epoxidequivalentzahl von 316 sowie einen Erweichungspunkt von 80°C aufwies, und das nicht mehr als 400 ppm hydrolytisch spaltbares Chlor enthält. Das erhaltene Epoxidharz (EP3) wird durch die folgende allgemeine Formel (62) wiedergegeben.



wobei G für eine Glycidylgruppe steht und "n" zwischen 0.0 und 1.0, sowie "m" zwischen 1.0 und 2.0 gewählt ist.

#### BEISPIEL 17:

[0216] 403.4 Gewichtsteile (0.5 Mol) des in Beispiel 4 erhaltenen Kondensates (F) wurden zu 93.85 Gewichtsteilen (0.5 Mol) Benzoguanamin, 52.7 Gewichtsteilen (0.65 Mol) einer Lösung von 37 Gewichtsprozent Formaldehyd, sowie 0.879 Gewichtsteilen (0.015 Mol) einer Lösung von 29 Gewichtsprozent Ammoniak gegeben und die Temperatur allmählich auf 100°C erhöht, wobei die Wärmeentwicklung beobachtet wurde. Die Reaktion wurde während 5 Stunden bei 100°C durchgeführt und die Temperatur dann für 2 Stunden bei Atmosphärendruck auf 180°C erhöht, um das Wasser zu entfernen. Anschließend wurden nicht abreagierte Verbindungen unter vermindertem Druck entfernt, um ein Phenolkondensat (P4) zu erhalten, welches einen Stickstoffgehalt von 10 Gewichtsprozent und eine Hydroxylgruppenequivalentzahl von 226 sowie einen Erweichungspunkt von 110°C aufwies. Das erhaltene Phenolkondensat (P4) wird durch die folgende allgemeine Formel (63) wiedergegeben.

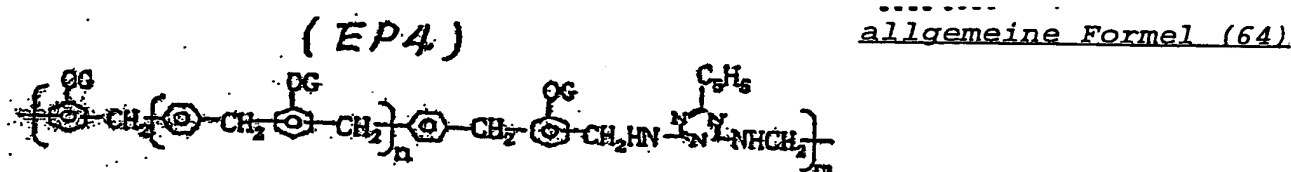


wobei "n" zwischen 0.0 und 1.0, sowie "m" zwischen 1.0 und 2.0 gewählt ist.

## BEISPIEL 18

[0217] 25 Gewichtsteile (0.05 Mol) des in Beispiel 17 erhaltenen Phenolkondensats (P4) wurden zu 50 Gewichtsteilen (0.54 Mol) Epichlorhydrin gegeben und die Temperatur zum Lösen auf 115 °C erhöht. Weiter wurden 20 Gewichtsteile (0.1 Mol) einer Lösung von 20 Gewichtsprozent Natriumhydroxid während 3 Stunden zugegeben und die Lösung für 30 Minuten in Ruhe belassen, um eine Phasentrennung zu bewirken, ehe die unten angeordnete Wasserschicht entfernt wurde.

[0218] Anschließend wurde überschüssiges Epichlorhydrin abdestilliert und einer erneuten Verwendung zugeführt. Es wurden 20 Gewichtsteile (1.2 Mol) Methylisobutylketon zugegeben und gelöst. Es wurden 0.5 Gewichtsteile (0.0025 Mol) einer Lösung von 20 Gewichtsprozent Natriumhydroxid zugegeben und die Lösung für 3 Stunden bei 70 °C belassen, um eine Phasentrennung zu bewirken, ehe die unten angeordnete Wasserschicht abgetrennt wurde. Der Rückstand wurde mit 200 Gewichtsteilen destilliertem Wasser gereinigt. Flüchtige Anteile wurden durch Destillation entfernt, um ein Epoxidharz (EP4) mit einem Stickstoffgehalt von 8 Gewichtsprozent und einer Epoxidequivalentzahl von 284 sowie einem Erweichungspunkt von 75 °C zu erhalten, welches hydrolytisch spaltbares Chlor in einer Menge von nicht mehr als 400 ppm enthielt. Das erhaltene Epoxidharz (EP4) wird durch die folgende allgemeine Formel (64) wiedergegeben.



wobei G für eine Glycidylgruppe steht und "n" zwischen 0.0 und 1.0, sowie "m" zwischen 1.0 und 2.0 gewählt ist.

## BEISPIEL 19:

[0219] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 11.23 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 7.74 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 1.13 Gewichtsprozent des oben erhaltenen Phenolkondensates (P3), welches einen Stickstoffgehalt von 10 Gewichtsprozent aufwies, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt.

[0220] Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100 °C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um eine Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0221] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85 °C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175 °C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde für 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte zur Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0222] Die in diesem Vergleichsbeispiel hergestellten Testplatten wurden auf Flammhemmung, auf den Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Untersuchungen zur Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 3 aufgeführt.

## Beispiel 20

[0223] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 10.47 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 8.69 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 0.94 Gewichtsprozent des oben erhaltenen Epoxidharzes (EP3) mit einem Stickstoffgehalt von 9 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100 °C gerollt und die Mischung anschließend abgekühlt und gebrochen, um eine Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0224] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85 °C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175 °C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zu Flammhemmung verformt. Anschlie-

ßend wurde während 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Testplatte zur Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0225] Die in diesem Vergleichsbeispiel hergestellten Testplatten wurden auf Flammhemmung, auf den Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Untersuchungen zur Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 3 aufgeführt.

#### BEISPIEL 21:

[0226] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 10.32 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 8.72 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 1.06 Gewichtsprozent des oben erhaltenen Epoxidharzes (EP4) mit einem Stickstoffgehalt von 8 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0 : 2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und dann die Mischung abgekühlt und gebrochen, um eine Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0227] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erwärmt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zu Flammhemmung verformt. Anschließend wurde für 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Testplatte zur Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0228] Die in diesem Vergleichsbeispiel hergestellten Testplatten wurden auf Flammhemmung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Untersuchungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 3 aufgeführt.

#### BEISPIEL 22:

[0229] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 11.43 Gewichtsteile Phenolphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 2), 7.54 Gewichtsteile Phenolphenylaralkylharz (Phenolharz 2), 1.13 Gewichtsprozent des oben erhaltenen Phenolkondensates (P4) mit einem Stickstoffgehalt von 10 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0230] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde für 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Testplatte zur Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0231] Die in diesem Vergleichsbeispiel hergestellten Testplatten wurden auf ihre Flammhemmung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit geprüft. Die Ergebnisse der Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 3 aufgeführt.

#### BEISPIEL 23:

[0232] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 8.94 Gewichtsteile 2-wertiges Biphenyl-Epoxidharz (Epoxidharz 3), 10.03 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 1.13 Gewichtsprozent des oben erhaltenen Phenolkondensates (P3) mit einem Stickstoffgehalt von 10 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0233] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zu Flammhemmung verformt. Anschlie-

ßend wurde während 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0234] Die in diesem Vergleichsbeispiel hergestellten Testplatten wurden auf ihre Flammhemmung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Prüfung auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 3 aufgeführt.

#### BEISPIEL 24:

[0235] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 5.62 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 3.86 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 4.63 Gewichtsteile Phenolphenylenaralkylharz (Phenolharz 2), 4.86 Gewichtsteile 2-wertiges Biphenyl-Epoxidharz (Epoxidharz 3), 1.13 Gewichtsprozent des oben erhaltenen Phenolkondensats (P3) mit einen Stickstoffgehalt von 10 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0236] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0237] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen Testplatten wurden auf ihre Flammhemmung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit überprüft. Die Ergebnisse der Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 3 aufgeführt.

#### BEISPIEL 25:

[0238] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 5.61 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 3.87 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 4.30 Gewichtsteile Phenolphenylenaralkylharz (Phenolharz 2), 5.19 Gewichtsteile Kresolnovolak-Epoxidharz (Epoxidharz 4), 1.13 Gewichtsprozent des oben erhaltenen Phenolkondensates (P3) mit einen Stickstoffgehalt von 10 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0239] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0240] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 3 aufgeführt.

#### BEISPIEL 26:

[0241] Bei einer Temperatur von 220°C wurden in einem Extruder 8.0 Gewichtsprozent des oben erhaltenen Phenolkondensats (P3) mit einem Stickstoffgehalt von 10 Gewichtsprozent, 91.5 Gewichtsprozent des oben beschriebenen ABS (thermoplastisches Harz 1), 0.5 Gewichtsprozent Polytetrafluorethylen (PTFE) vermischt, um eine Harzzusammensetzung herzustellen. Diese Harzzusammensetzung wurde bei 120°C während 3 Stunden getrocknet, ehe sie während einer Minute bei 200°C durch Spritzgießen zu einer flachen Platte mit einer Stärke von 3.2 Millimetern verformt wurde.

[0242] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, ihre thermische Stabilität und ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Prüfung auf Beständigkeit gegenüber Feuch-

tigkeit sind unten in Tabelle 3 aufgeführt.

**BEISPIEL 27:**

[0243] Bei einer Temperatur von 220°C wurden in einem Extruder 8.0 Gewichtsprozent des oben erhaltenen Phenolkondensats (P3) mit einem Stickstoffgehalt von 10 Gewichtsprozent, 91.5 Gewichtsprozent des oben beschriebenen PS (thermoplastisches Harz 2), 0.5 Gewichtsprozent Polytetrafluorethylen (PTFE) geschmolzen und vermischt, um eine Harzzusammensetzung herzustellen. Diese Harzzusammensetzung wurde bei 120°C für 3 Stunden getrocknet und anschließend bei 200°C während 1 Minute durch Spritzgießen zu einer flachen Platte mit einer Dicke von 3.2 Millimetern geformt.

[0244] Die in diesem Vergleichsbeispiel hergestellten Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, ihre thermische Stabilität sowie ihre Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Untersuchungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 3 aufgeführt.

TABELLE 3

	Bsp. 19	Bsp. 20	Bsp. 21	Bsp. 22	Bsp. 23	Bsp. 24	Bsp. 25	Bsp. 26	Bsp. 27
Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1)	11.23	10.47	10.32	-	-	5.62	5.61	-	-
Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1)	7.74	8.69	8.72	-	10.03	3.86	3.87	-	-
Phenolphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 2)	-	-	-	11.43	-	-	-	-	-
Phenolphenylaralkylharz (Phenolharz 2)	-	-	-	7.54	-	4.53	4.30	-	-
2-wertiges Biphenyl-Epoxidharz (Epoxidharz 3)	-	-	-	-	8.94	4.86	-	-	-
Cresolnovolak-Epoxidharz (Epoxidharz 4)	-	-	-	-	-	-	5.19	-	-
Phenolbiphenyltriazin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE1], N6 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbiphenyltriazinharz (Phenolkondensat [P1], N8 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolphenyltriazin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE2], N6 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolphenyltriazinharz (Phenolkondensat [P2], N8 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbiphenylbenzozuguanamin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE3], N9 Gew.-%)	-	0.94(4.7/0.42)	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbiphenylbenzozuguanaminharz (Phenolkondensat [P3], N10 Gew.-%)	1.13(5.6/0.58)	-	-	-	1.13(5.6/0.56)	1.13(5.6/0.56)	8.0(8/0.8)	-	-
Phenolphenylbenzozuguanamin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE4], N8 Gew.-%)	-	-	1.06(5.3/0.42)	-	-	-	-	-	-
Phenolphenylbenzozuguanaminharz (Phenolkondensat [P4], N10 Gew.-%)	-	-	-	1.13(5.6/0.56)	-	-	-	-	-
Phenoltriazin-Epoxidharz (N6 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenoltriazinharz (N8 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbenzozuguanamin-Epoxidharz (N15 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbenzozuguanaminharz (N19 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
ABS (thermoplastisches Harz 1)	-	-	-	-	-	-	-	91.5	-
PS (thermoplastisches Harz 2)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
amorphes sphärisches Silicapulver	79.0	79.0	79.0	79.0	79.0	79.0	79.0	-	91.5
Ruß	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	-	-
Silan-Kopplungsagens	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	-	-
Carbaabwachs	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	-	-
Triphenylphosphin (T.P.P)	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	-	-
Polytetrafluorethylen (PTFE)	-	-	-	-	-	-	-	-	-
UL94 Kriterium	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	0.5	0.5
Gesamtheit der Nachbrennzeiten	3	5	12	14	16	24	11	90	110
Absorptionskoeffizient für kochendes Wasser für 24 Stunden Gew.-%	0.16	0.15	0.19	0.20	0.21	0.22	0.20	ungeprüft	ungeprüft
Widerstandsfähigkeit gegen thermische Zersetzung (Temperatur bei Ernieidigung um 5 Gew.-%) °C	630	620	610	595	595	430	595	ungeprüft	ungeprüft
Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit (Zeit bei einer Delektate von 20 %) Zeit	460	460	450	450	440	430	440	ungeprüft	ungeprüft

(AB): A = Gewichtsprozent des Harzes bezogen auf die gesamte Harzmenge

B = Gewichtsprozent Stickstoffatome bezogen auf die gesamte Harzmenge

\*: Epoxidharz und Phenolharz dieser Erfindung

## VERGLEICHBSBEISPIEL 9:

[0245] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 11.3 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 8.18 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 0.59 Gewichtsprozent Phenolbenzozuguanaminharz mit einem Stickstoffgehalt von 19 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent

Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0246] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend mit Hilfe einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0247] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen Testplatten wurden auf ihre Flammhemmung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die bei dieser Prüfung erhaltenen Ergebnisse zur Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 4 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 10:

[0248] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 10.8 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 8.74 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 0.56 Gewichtsprozent Phenolbenzoguanamin-Epoxidharz mit einem Stickstoffgehalt von 15 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0249] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0250] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit überprüft. Die Ergebnisse der Prüfungen auf die Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 4 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 11:

[0251] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 11.51 Gewichtsteile Phenolphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 2), 8.00 Gewichtsteile Phenolphenylaralkylharz (Phenolharz 2), 0.59 Gewichtsprozent Phenolbenzoguanaminharz mit einem Stickstoffgehalt von 19 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0252] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0253] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 4 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 12:

[0254] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 9.03 Gewichtsteile 2-wertiges Biphenyl-Epoxidharz (Epoxidharz 3), 10.48 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 0.59 Gewichtsprozent Phenolbenzoguanaminharz mit einem Stickstoffgehalt von 19 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtspro-

zent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0255] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0256] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit überprüft. Die Ergebnisse der Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 4 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 13:

[0257] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 5.72 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 4.30 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 4.63 Gewichtsteile Phenolphenylaralkylharz (Phenolharz 2), 4.86 Gewichtsteile 2-wertiges Biphenyl-Epoxidharz (Epoxidharz 3), 0.59 Gewichtsprozent Phenolbenzoguanaminharz mit einem Stickstoffgehalt von 19 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0258] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175 °C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf Flammhemmung zu erhalten.

[0259] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 4 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 14:

[0260] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 5.72 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1), 4.30 Gewichtsteile Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1), 4.30 Gewichtsteile Phenolphenylaralkylharz (Phenolharz 2), 5.19 Gewichtsteile Cresolnovolak-Epoxidharz (Epoxidharz 4), 0.59 Gewichtsprozent Phenolbenzoguanaminharz mit einem Stickstoffgehalt von 19 Gewichtsprozent, 79.0 Gewichtsprozent amorphes sphärisches Silicapulver, 0.4 Gewichtsprozent Ruß, 0.1 Gewichtsprozent Silan-Kopplungsagens, 0.2 Gewichtsprozent Carnaubawachs, 0.2 Gewichtsprozent Triphenylphosphin (T.T.P) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0261] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zur Flammhemmung verformt. Anschließend wurde während 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf flammhemmende Wirkung zu erhalten.

[0262] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit untersucht. Die Ergebnisse der Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 4 aufgeführt.

#### VERGLEICHBSBEISPIEL 15:

[0263] Bei Raumtemperatur wurden zunächst 4.2 Gewichtsprozent Phenolbenzoguanaminharz mit einem Stickstoffgehalt von 19 Gewichtsprozent, 95.3 Gewichtsprozent des oben beschriebenen PS (thermoplasti-

sches Harz 2), 0.5 Gewichtsprozent Polytetrafluorethylen (PTFE) vermischt. Anschließend wurde die Mischung für ungefähr 5 Minuten bei 100°C gerollt und die Mischung dann abgekühlt und gebrochen, um die Harzzusammensetzung zu erhalten.

[0264] Die Harzzusammensetzung wurde zu einer Tablette gepresst. Diese Tablette wurde zunächst auf 85°C erhitzt und anschließend unter Verwendung einer Einkolben-Spritzpresse bei einer Einspritzzeit von 15 Sekunden, einem Einspritzdruck (wirksamer Druck) von 100 kg/cm<sup>2</sup>, einer Formtemperatur von 175°C, einer Formzeit von 120 Sekunden in Übereinstimmung mit der Vorschrift UL94 zu Flammhemmung verformt. Anschließend wurde für 6 Stunden bei 175°C ausgehärtet, um eine Testplatte für die Prüfung auf Flammhemmung Wirkung zu erhalten.

[0265] Die in diesem Vergleichsbeispiel erhaltenen Testplatten wurden auf ihre flammhemmende Wirkung, auf ihren Absorptionskoeffizienten für kochendes Wasser, auf ihre thermische Stabilität, sowie auf ihre Widerstandsfähigkeit gegenüber Feuchtigkeit geprüft. Die Ergebnisse dieser Prüfungen auf Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit sind unten in Tabelle 4 dargestellt.

TABELLE 4

	Vgl.-Bsp. 9	Vgl.-Bsp. 10	Vgl.-Bsp. 11	Vgl.-Bsp. 12	Vgl.-Bsp. 13	Vgl.-Bsp. 14-	Vgl.-Bsp. 15
Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 1)	11.3	10.8	-	-	5.72	5.72	-
Phenolbiphenylaralkylharz (Phenolharz 1)	8.18	8.74	-	10.48	4.30	4.30	-
Phenolphenylenaralkyl-Epoxidharz (Epoxidharz 2)	-	-	11.51	-	-	-	-
Phenolphenylenaralkylharz (Phenolharz 2)	-	-	8.00	-	4.63	4.30	-
2-wertiges Biphenyl-Epoxidharz (Epoxidharz 3)	-	-	-	9.03	4.86	-	-
Cresolnovolak-Epoxidharz (Epoxidharz 4)	-	-	-	-	-	5.19	-
Phenolbiphenyltriazin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE1], N6 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbiphenyltriazinharz (Phenolkondensat [P1], N8 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-
Phenolphenyltriazin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE2], N6 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-
Phenolphenyltriazinharz (Phenolkondensat [P2], N8 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbiphenylbenzozuguanamin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE3], N9 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbiphenylbenzozuguanaminharz (Phenolkondensat [P3], N10 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-
Phenolphenylenbenzozuguanamin-Epoxidharz (Epoxidharz [PE4], N8 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-
Phenolphenylenbenzozuguanaminharz (Phenolkondensat [P4], N10 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-
Phenoltriazin-Epoxidharz (N6 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-
Phenoltriazinharz (N8 Gew.-%)	-	-	-	-	-	-	-
Phenolbenzozuguanamin-Epoxidharz (N15 Gew.-%)	-	0.56(2.8/0.42)	-	-	-	-	-
Phenolbenzozuguanaminharz (N19 Gew.-%)	0.59(2.9/0.56)	-	0.59(2.9/0.56)	0.59(2.9/0.56)	0.59(2.9/0.56)	0.59(2.9/0.56)	4.2(4.2/0.8)
ABS (thermoplastisches Harz 1)	-	-	-	-	-	-	-
PS (thermoplastisches Harz 2)	-	-	-	-	-	-	9.53
amorphes sphärisches Silicapulver	-	-	-	-	-	-	-
Ruß	79.0	79.0	79.0	79.0	79.0	79.0	-
Silan-Kopplungsagens	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4	-
Carnaubawachs	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	-
Triphenylphosphin (TPP)	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	-
Polytetrafluorethylen (PTFE)	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2	-
UL94 Kriterium	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	V-0	0.5
Gesamtzeit der Nachbrennzeiten	26	28	30	44	31	30	180
Absorptionskoeffizient für kochendes Wasser für 24 Stunden	0.23	0.24	0.27	0.32	0.36	0.28	ungeprüft
Widerstandsfähigkeit gegen thermische Zersetzung (Temperatur bei Er niedrigung um 5 Gew.-%)	565	558	555	550	540	560	ungeprüft
Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit (Zeit bei einer Defektrate von 20 %)	410	410	395	380	385	400	ungeprüft

(A/B): A = Gewichtsprozent des Harzes bezogen auf die Gesamtmenge des Harzes

B = Gewichtsprozent Stickstoffatome bezogen auf die Gesamtmenge des Harzes

\*... Epoxidharz und Phenolharz dieser Erfindung

[0266] Die neuen Harzzusammensetzungen, welche die Verbesserten flammhemmenden Harzmaterialien in den Beispielen 7, 8, 11, 19 bis 21 enthalten, haben überlegene Eigenschaften in Bezug auf die flammhemmende Wirkung, die thermische Stabilität bzw. die Beständigkeit gegenüber thermischer Zersetzung, die Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit im Vergleich zu den herkömmlich bekannten Harzzusammensetzungen, wel-

che die bisher bekannten flammhemmenden Harzmaterialen wie in den Vergleichsbeispielen 1, 2, 9, 10 enthalten.

[0267] Die neue Harzzusammensetzung, welche das verbesserte flammhemmende Harzmaterial aus Beispiel 9 enthält, zeigt eine sehr gute flammhemmende Wirkung, thermische Stabilität, beziehungsweise Beständigkeit gegenüber thermischer Zersetzung, sowie eine hohe Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit im Vergleich zu bisher verwendeten Harzzusammensetzungen, welche ein konventionelles flammhemmendes Harzmaterial, wie in den Vergleichsbeispielen 3 und 4 enthalten.

[0268] Die neuen Harzzusammensetzungen mit dem verbesserten flammhemmenden Harzmaterial aus den Beispielen 12, 22 zeigen eine sehr gute flammhemmende Wirkung, thermische Stabilität beziehungsweise Widerstandsfähigkeit gegenüber thermischer Zersetzung, Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit im Vergleich zu bisher bekannten Harzzusammensetzungen, welche die konventionellen flammhemmenden Harzmaterialien wie in den Vergleichsbeispielen 5, 11 enthalten.

[0269] Die neue Harzzusammensetzung mit dem verbesserten flammhemmenden Harzmaterial aus Beispiel 23 zeigt ausgezeichnete Eigenschaften. in der flammhemmenden Wirkung, der thermischen Stabilität beziehungsweise der Widerstandsfähigkeit gegenüber thermischer Zersetzung und der Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit im Vergleich zu bisher bekannten Harzzusammensetzungen, welche bisher bekannte flammhemmende Harzmaterialien enthalten, wie in Vergleichsbeispiel 12.

[0270] Die neue Harzzusammensetzung, welche das verbesserte flammhemmende Harzmaterial aus Beispiel 24 enthält, zeigt eine sehr gute flammhemmende Wirkung, thermische Stabilität; beziehungsweise Widerstandsfähigkeit gegenüber thermischer Zersetzung und Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit im Vergleich zu bisher bekannten Harzzusammensetzung, welche bisher übliche flammhemmende Harzmaterialien enthält, wie in Vergleichsbeispiel 13.

[0271] Die neue Harzzusammensetzung mit der verbesserten flammhemmenden Harzzusammensetzung aus Beispiel 25 zeigt eine sehr gute flammhemmende Wirkung, thermische Stabilität, beziehungsweise Beständigkeit gegenüber thermischer Zersetzung sowie Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit im Vergleich zu bisher bekannten Harzzusammensetzungen, welche bisher bekannte flammhemmende Harzmaterialien enthalten, wie in Vergleichsbeispiel 14.

[0272] Die neuen Harzzusammensetzungen, welche das verbesserte flammhemmende Harzmaterial aus den Beispielen 13, 26 enthalten, zeigen eine ausgezeichnete flammhemmende Wirkung, thermische Stabilität, beziehungsweise Beständigkeit gegenüber thermischer Zersetzung, sowie eine Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit im Vergleich zu bisher bekannten Harzzusammensetzungen, welche bisher bekannte flammhemmende Harzmaterialien, wie in den Vergleichsbeispielen 6, 7 enthalten.

[0273] Die neuen Harzzusammensetzungen, welche das verbesserte flammhemmende Harzmaterial aus den Beispielen 14, 27 enthalten, zeigen sehr gute flammhemmende Eigenschaften, eine sehr hohe thermische Stabilität, beziehungsweise Beständigkeit gegenüber thermischer Zersetzung, sowie eine sehr hohe Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit im Vergleich zu bisher bekannten Harzzusammensetzungen, welche die bisher üblichen flammhemmenden Harzmaterialien, wie in Vergleichsbeispielen 8, 15 enthalten.

[0274] Die bisher üblichen Harzzusammensetzungen umfassen Phenolharze, welche Triazinringe in ihrem Molekülskelett enthalten, oder umfassen Epoxidharze, welche Triazinringe in ihrem Molekülgerüst enthalten. Die anderen üblichen Harzzusammensetzungen enthalten sowohl Phenolbiphenylaralkyl-Epoxidharze, welche Biphenylgruppen in ihrem Molekülgerüst enthalten, sowie Phenolharze, welche Triazinringe in ihrem Molekülgerüst enthalten. Die neuen Harzzusammensetzungen enthalten flammhemmende Harzzusammensetzungen, welche sowohl Triazinringe wie auch aromatische Ringe im gleichen Molekülgerüst enthalten.

### Patentansprüche

1. Flammhemmendes Phenolharz-Material, das ein Phenolkondensat enthält, worin eine polyaromatische Verbindung, die durch eine Kondensationsreaktion von Phenolen (A) mit Aromaten (B), welche keine Phenole enthalten, und einer heterocyclischen Verbindung (C), die Stickstoff als Heteroatom enthält, erhalten wurde, über Aldehyde (D) kondensiert wird.

2. Flammhemmendes Phenolharz-Material nach Anspruch 1, worin die Aromaten (B) durch die folgende chemische Formel (1) dargestellt werden:



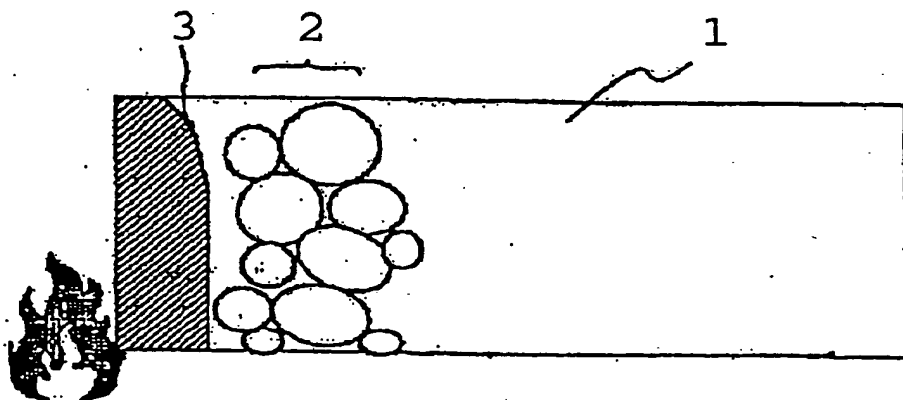
wobei R<sub>1</sub> ein Diphenylderivat, ein Phenylderivat, ein Naphtalinderivat, ein Diphenylenderivat, ein Fluorenderivat oder ein Diphenolfluoren-Derivat, und X ein Halogenatom, eine Hydroxygruppe oder eine Alkoxygruppe mit nicht mehr als 10 Kohlenstoffatomen bedeuten kann.

3. Flammhemmendes Phenolharz-Material nach Anspruch 2, worin  $R_1$  entweder in Diphenylderivat oder ein Phenylenderivat ist.
4. Flammhemmendes Phenolharz-Material nach Anspruch 1, worin die heterocyclische Verbindung (C) aus den Triazinen ausgewählt ist.
5. Flammhemmendes Phenolharz-Material nach Anspruch 4, worin die Triazine Verbindungen mit mindestens einer Aminogruppe umfassen.
6. Flammhemmendes Phenolharz-Material nach Anspruch 4, worin die Triazine mindestens eine Verbindung darstellen, die aus Melamin, Acetoguanamin und Benzoguanamin ausgewählt ist.
7. Flammhemmende Harzzusammensetzung, die mindestens ein flammhemmendes Phenolharz-Material nach Anspruch 1 enthält.
8. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 7, die weiterhin ein aromatisches Duroplastharz mit aromatischen Ringen auf einem Hauptkettengerüst enthält.
9. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 8, worin das aromatische Duroplastharz ein Epoxidharz mit einer Novolak-Struktur enthält.
10. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 8, worin das aromatische Duroplastharz ein Phenolharz mit einer Novolak-Struktur enthält.
11. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 8, worin das aromatische Duroplastharz ein Phenolaralkyl-Epoxidharz mit aromatischen Ringen in einer Hauptkette mit Novolak-Struktur enthält.
12. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 11, worin das Phenolaralkyl-Epoxidharz auf der Hauptkette mit Novolak-Struktur mindestens entweder ein Diphenylderivat oder ein Phenylenderivat enthält.
13. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 8, worin das aromatische Duroplastharz ein Phenolarakyl-Phenolharz mit aromatischen Ringen in einer Hauptkette mit Novolak-Struktur enthält.
14. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 13, worin das Phenolarakyl-Phenolharz in der Hauptkette mit Novolak-Struktur mindestens entweder ein Diphenylderivat oder ein Phenylenderivat besitzt.
15. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 7, die weiterhin ein aromatisches Thermoplastharz mit aromatischen Ringen in einem Hauptkettengerüst enthält.
16. Halbleiter-Bauelement mit einem Abdichtharz, das eine flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 7 enthält.
17. Eine Leiterplatte mit einem Isolator, der eine flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 7 enthält.
18. Formwerkstoff, der eine flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 7 enthält.
19. Flammhemmendes Epoxidharz-Material, das ein Epoxidharz enthält, das durch eine Glycidyl-Veretherung mindestens eines Teils der PhenolHydroxygruppen einer polyaromatischen Verbindung, die durch eine Kondensationsreaktion von Phenolen (A) mit Aromaten (B), die keine Phenole enthalten, erhalten wurde, und einer heterocyclischen Verbindung (C), die Stickstoff als Heteroatom enthält, über Aldehyde (D) erhalten wurde.
20. Flammhemmendes Epoxidharz-Material nach Anspruch 19, worin die Aromaten (B) durch die folgende Formel (1) dargestellt werden. "(1)"  $\text{XH}_2\text{C}-\text{R}_1-\text{CH}_2\text{X}$  wobei  $\text{R}_1$  ein Diphenylderivat, ein Phenylenderivat, ein Naphtalinderivat, ein Diphenylenderivat, ein Flourenderivat oder ein Diphenolflouren-Derivat, und X ein Halogenatom, eine Hydroxygruppe oder eine Alkoxygruppe mit nicht mehr als 10 Kohlenstoffatomen bedeuten.

21. Flammhemmendes Epoxidharz-Material nach Anspruch 20, worin R1 entweder ein Biphenylderivat oder ein Phenylenderivat ist.
22. Flammhemmendes Epoxidharz-Material nach Anspruch 19, worin die heterocyclische Verbindung (C) aus den Triazinen ausgewählt wird.
23. Flammhemmendes Epoxidharz-Material nach Anspruch 22, worin die Triazine Verbindungen mit mindestens einer Aminogruppe enthalten.
24. Flammhemmendes Epoxidharz-Material nach Anspruch 22, worin die Triazine mindestens eine Verbindung darstellen, die aus Melamin, Acetoguanamin und Benzoguanamin ausgewählt ist.
25. Flammhemmende Harzzusammensetzung, die mindestens ein flammhemmendes Epoxidharz-Material nach Anspruch 19 enthält.
26. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 25, die weiterhin ein aromatisches Duroplastharz mit aromatischen Ringen in einem Hauptkettengerüst enthält.
27. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 26, worin das aromatische Duroplastharz ein Epoxidharz mit einer Novolak-Struktur aufweist.
28. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 26, worin das aromatische Duroplastharz ein Phenolharz mit einer Novolak-Struktur enthält.
29. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 26, worin das aromatische Duroplastharz ein Phenolaralkyl-Epoxidharz mit aromatischen Ringen in einer Hauptkette mit Novolak-Struktur aufweist.
30. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 29, worin das Phenolaralkyl-Epoxidharz in der Hauptkette mit Novolak-Struktur mindestens ein Diphenylderivat oder ein Phenylenderivat besitzt.
31. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 26, worin das aromatische Duroplastharz in einer Hauptkette mit Novolak-Struktur ein Phenolaralkyl-Phenolharz mit aromatischen Ringen enthält.
32. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 31, worin das Phenolaralkyl-Phenolharz in der Hauptkette mit Novolak-Struktur mindestens ein Diphenylderivat oder Phenylenderivat enthält.
33. Flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 25, die weiterhin ein aromatisches Thermoplastharz mit aromatischen Ringen in einem Hauptkettengerüst enthält.
34. Halbleiter-Bauelement mit einem Abdichtharz, das eine flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 25 aufweist.
35. Leiterplatte mit einem Isolator, der die flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 25 aufweist.
36. Formwerkstoff, der eine flammhemmende Harzzusammensetzung nach Anspruch 25 aufweist.  
Die neuen Harzzusammensetzungen zeigen sehr gute flammhemmende Eigenschaften, eine hohe thermische Stabilität, beziehungsweise Beständigkeit gegenüber thermischer Zersetzung und Beständigkeit gegenüber Feuchtigkeit, im Vergleich zu den bisher verwendeten Harzzusammensetzungen.

Es folgt ein Blatt Zeichnungen

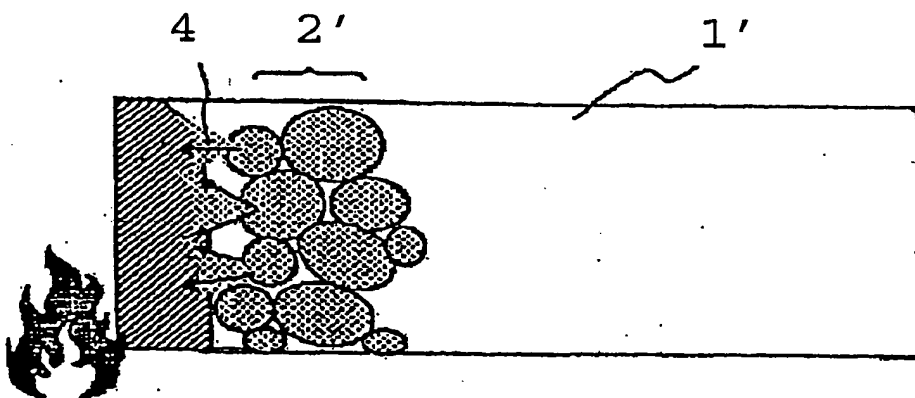
FIG. 1A



Ausbreitungsrichtung der Flammenfront ➡

Schaumschicht ist frei von stickstoffhaltigen Gasen

FIG. 1B



Ausbreitungsrichtung der Flammenfront ➡

Schaumschicht mit stickstoffhaltigen Gasen